

Dynamische Symmetrien und Harmonischenerzeugung in intensiven Laserfeldern

Vom Fachbereich Physik
der Technischen Universität Darmstadt

zur Erlangung des Grades
eines Doktors der Naturwissenschaften
(Dr. rer. nat.)

genehmigte
Dissertation

von
Dott. Francesco Ceccherini
aus Lucca (Italien)

Referent: Prof. Dr. P. Mulser
Korreferent: Prof. Dr. J. Kübler

Tag der Einreichung: 23.10.2001
Tag der Prüfung: 10.12.2001

Darmstadt 2001
D17

Vorwort

In dieser Arbeit werden durch numerische Simulationen und analytische Berechnungen einige bei der Wechselwirkung zwischen intensiven Laserfeldern mit Atomen und Molekülen auftretenden Multiphotonenprozesse untersucht. Dabei bedeutet ein „intensives“ Laserfeld, daß perturbative Methoden, die dieses lediglich als Störung des Bindungspotentials ansehen, nicht mehr anwendbar sind. Dies ist bei äußeren Elektronen typischerweise bei Laserintensitäten $I > 10^{12} \text{ W/cm}^2$ der Fall. Insbesondere ist die Aufmerksamkeit auf die Harmonischenerzeugung in Systemen gerichtet worden, die invariant unter einer sogenannten „dynamischen Symmetrie“ sind. Beispiele solcher Systeme sind zyklische Moleküle (Benzol) und Atome in Zweifarbenlaserfeldern. Dabei zeigte sich, daß im Vergleich zu dem in der Literatur Bekannten die Struktur des Harmonischenspektrums sehr viel reichhaltiger ist. In der vorliegenden Arbeit wird diese Struktur mittels Gruppentheorie vollständig erklärt.

Die wichtigsten Ergebnisse dieser Arbeit sind in [29, 30] veröffentlicht. Andere Ergebnisse, auf die in dieser Arbeit weniger ausführlich eingegangen wird, sind in [15, 32, 34] publiziert.

Im Kapitel 1 wird eine kurze Einführung in die Multiphotonenphysik gegeben, in Kapitel 2 werden die benutzten numerischen Techniken erklärt. Im 3. Kapitel wird eine ausführliche Beschreibung des numerischen Modells und die zur Harmonischenerzeugung erhaltenen Ergebnisse präsentiert. Diese Resultate werden in Rahmen gruppentheoretischer Betrachtungen analysiert. Zum Schluß folgt eine Zusammenfassung und ein Ausblick. In dieser Arbeit werden atomare Einheiten (a.E.) verwendet.

Inhaltsverzeichnis

1	Einführung in die Multiphotonenphysik	1
1.1	„Above-Threshold“-Ionisation	5
1.2	Harmonischenerzeugung	8
1.3	Adiabatische Stabilisierung	11
2	Simulationen von Multiphotonenprozessen	15
2.1	Der Algorithmus	15
2.1.1	Diskretisierung der Ortsableitungen	19
2.2	Ergebnisse zu „Above-Threshold“-Ionisation	21
2.3	Ergebnisse zur Harmonischenerzeugung	23
2.4	Simulationen in zylindrischer Symmetrie	27
3	Harmonischenerzeugung in Molekülen	29
3.1	Einleitung	29
3.2	Symmetrie des Hamilton-Operators	30
3.3	Gruppentheorie	32
3.4	Einzelne Zustand	34
3.4.1	Alternative Herleitungen	36
3.5	Viele Zustände	38
3.6	Benzolmolekül	42
3.7	Numerisches Modell	44
3.8	Ergebnisse im nichtresonanten Fall	47
3.8.1	Niedrige Felder	47

3.8.2	Hohe Felder	49
3.9	Ergebnisse im resonanten Fall	54
	Zusammenfassung und Ausblick	59
A	Der Zeitentwicklungsoperator	61
B	Berechnung des Elektronen-Spektrums	69

Kapitel 1

Einführung in die Multiphotonenphysik

Mit den Lasern, die heutzutage verfügbar sind, kann man sehr hohe elektrische Feldstärken erreichen. Das elektrische Feld des Lasers kann viel stärker sein als das elektrische Feld des Atomkerns. Ein Elektron „fühlt“ im niedrigsten Zustand des Wasserstoffatoms ein Feld, das einer Laserintensität von $3 \times 10^{16} \text{ W/cm}^2$ entspricht. Laserintensitäten bis 10^{22} W/cm^2 können heute erzeugt werden. Mit hohen Feldern werden Multiphotonenprozesse wahrscheinlich und man beobachtet verschiedene Phänomene, die mit Standardstörungstheorie nicht vollständig erklärt werden können, z. B. „Above-Threshold“-Ionisation (ATI), Erzeugung von hohen Harmonischen und Stabilisierung (eine Übersicht wird in [1] gegeben). Diese drei Prozesse werden in den nächsten drei Abschnitten beschrieben. Störungstheorie liefert die generalisierte Ionisierungsrate

$$\hbar\omega\Gamma_n = \sigma_n I^n,$$

wobei Γ_n die Rate für Ionisation mit n Photonen, σ_n der generalisierte Photoionisationsquerschnitt und I die Intensität des Laserfeldes ist. Vergleicht man $\hbar\omega\Gamma_n$ für verschiedene Intensitäten, so kann man die Gültigkeit der Störungstheorie abschätzen. In Tabelle 1.1 sind die Ionisationsraten für $n \geq 12$ bei zwei Intensitäten $I_1 = 10^{13}$ und $I_2 = 10^{14} \text{ Wcm}^{-2}$ verglichen. Man beobachtet, daß mit der niedrigeren Intensität

Tabelle 1.1: Ionisationsraten für zwei Intensitäten, $I_1 = 10^{13}$ und $I_2 = 10^{14}$.

Ordnung n	σ_n	$\hbar\omega\Gamma_n(I_1)$	$\hbar\omega\Gamma_n(I_2)$
12	$1.62 \times 10^{-167} \text{cm}^{24} \text{W}^{-11}$	$\sim 10^{-1}$	$\sim 10^1$
13	$3.57 \times 10^{-180} \text{cm}^{26} \text{W}^{-12}$	$\sim 10^{-11}$	$\sim 10^2$
14	$4.40 \times 10^{-193} \text{cm}^{28} \text{W}^{-13}$	$\sim 10^{-11}$	$\sim 10^3$
15	$4.17 \times 10^{-206} \text{cm}^{30} \text{W}^{-14}$	$\sim 10^{-11}$	$\sim 10^4$
16	$3.36 \times 10^{-219} \text{cm}^{32} \text{W}^{-15}$	$\sim 10^{-11}$	$\sim 10^5$
17	$2.36 \times 10^{-232} \text{cm}^{34} \text{W}^{-16}$	$\sim 10^{-11}$	$\sim 10^6$
18	$1.46 \times 10^{-245} \text{cm}^{36} \text{W}^{-17}$	$\sim 10^{-11}$	$\sim 10^7$
19	$8.10 \times 10^{-259} \text{cm}^{38} \text{W}^{-18}$	$\sim 10^{-12}$	$\sim 10^8$
20	$4.04 \times 10^{-272} \text{cm}^{40} \text{W}^{-19}$	$\sim 10^{-12}$	$\sim 10^8$

I_1 die Reihe der Raten $\sum_n \hbar\omega\Gamma_n$ konvergiert, mit der hohen nicht. Dies bedeutet, daß die Störungstheorie spätestens bei 10^{14} Wcm^{-2} nicht mehr angewendet werden kann.

Es ist üblich, je nach Ionisationsmechanismus von drei verschiedenen Bereichen zu sprechen. Die Grenzen dieser Regime sind von drei Parametern abhängig: Ionisationsenergie E_{ip} , Laserfrequenz ω und ponderomotorischer Energie U_p (d.h. die zeitgemittelte Schwingungsenergie des Elektrons im Laserfeld). (i) $E_{ip} > \hbar\omega \gg U_p$: in dieser Region können klassische nichtlineare Optik und Störungstheorie benutzt werden. (ii) $E_{ip} > U_p > \hbar\omega$: hier tritt sog. „Above-Threshold“-Ionisation auf. Wenn das Feld nicht zu hoch ist, kann man Störungstheorie benutzen, aber hohe Ordnungen müssen berücksichtigt werden. (iii) $U_p > E_{ip} \gg \hbar\omega$: in diesem Bereich treten Tunnelionisation (Abbildung 1.1) und bei sehr hohen Intensitäten „Barrier-Suppression“-Ionisation (Abbildung 1.2) auf; Störungstheorie konvergiert nicht mehr.

In Störungstheorie ist die ponderomotorische Energie im Vergleich zur Ionisierungsenergie klein. Die Eigenzustände des ungestörten Atoms bilden noch eine gute Basis. Bei der Tunnelionisation ist U_P groß, aber die Laserfrequenz ist klein. Man kann das Laserfeld als quasistatisch ansehen, da die inneratomare Zeitskala schneller als der Laserzyklus ist. Unter diesen statischen Bedingungen zeigt das effektive Po-

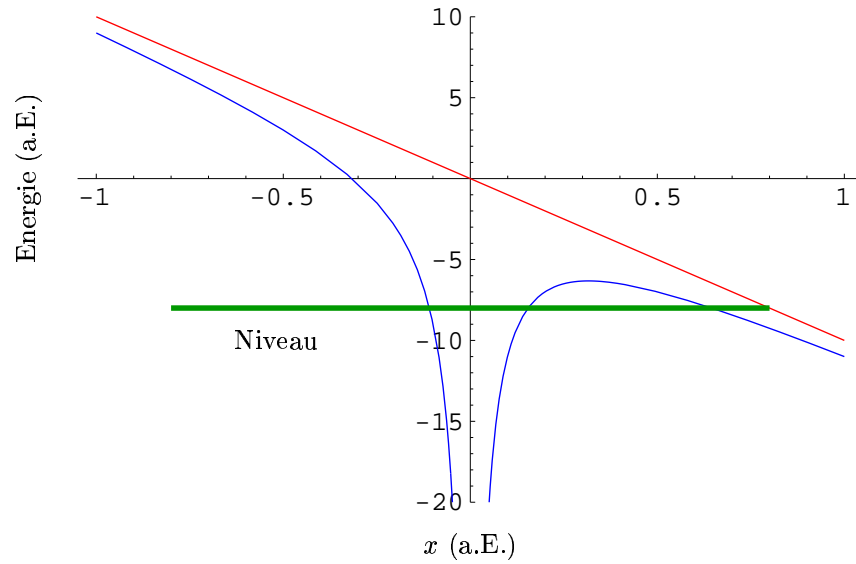


Abbildung 1.1: Tunnelionisation: das effektive Potential zeigt eine Barriere, und das Elektron wird durch den Tunneleffekt freigesetzt.

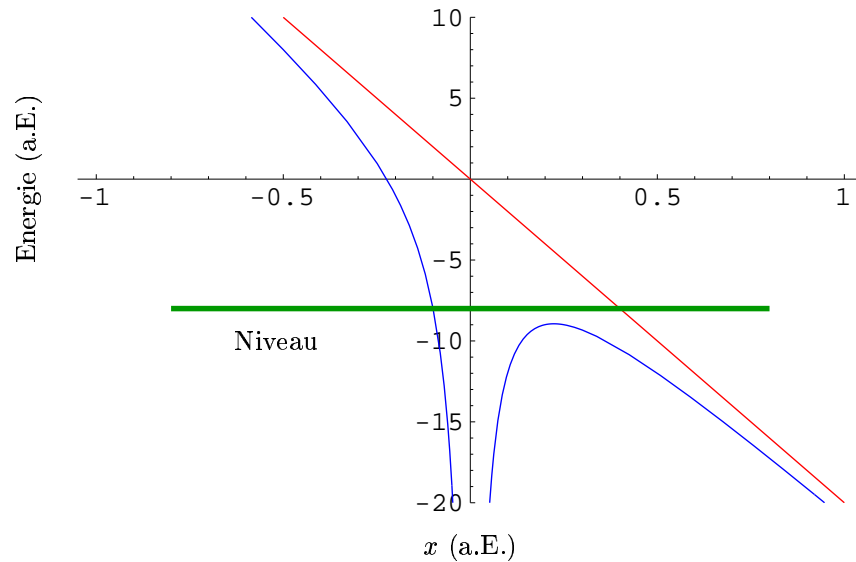


Abbildung 1.2: „Barrier-Suppression“-Ionisation: das Laserfeld ist so intensiv, daß das effektive Potential eine Barriere unterhalb des Anfangszustandsniveaus zeigt. Das Elektron kann somit klassisch entkommen.

tential eine Potentialbarriere und Ionisation durch den Tunneleffekt wird möglich (Abbildung 1.1).

Die freien Elektronen, die durch Tunnelionisation das Atom verlassen, können näherungsweise durch die sogenannten „Volkov-Zustände“ beschrieben werden [2]. Die Volkov-Zustände sind Lösungen der zeitabhängigen Schrödinger-Gleichung für freie Teilchen im Ortsunabhängigen Laserfeld (Dipolnäherung). In Geschwindigkeitseichung ist die Schrödinger-Gleichung in cgs-Einheiten durch

$$\frac{[\vec{p} - (e/c)\vec{A}(\vec{x}, t)]^2}{2m_e}\psi(\vec{x}, t) = i\hbar\frac{\partial\psi(\vec{x}, t)}{\partial t} \quad (1.1)$$

gegeben. Wenn die Dipolnäherung benutzt wird, d.h. $\vec{A}(\vec{x}, t) \approx \vec{A}(t) = \hat{\epsilon} A_0 \sin(\omega t)$, sind die Lösungen von (1.1), d.h. die Volkov-Zustände, ebene Wellen mit einer schwingenden Phase,

$$\begin{aligned} \psi_{Vol}(\vec{x}, t) = \exp & \left(\frac{i}{\hbar} \vec{p} \cdot \vec{x} - \frac{i}{\hbar} \frac{p^2}{2m_e} t - \frac{i}{\hbar} \frac{e^2 A_0^2}{4m_e c^2} t \right. \\ & \left. - \frac{i}{\hbar} \frac{e^2 A_0^2}{8\omega m_e c^2} \sin(2\omega t) + |\hat{\epsilon} \cdot \vec{p}| \frac{e A_0}{m_e \omega c} \sin(\omega t) \right). \end{aligned} \quad (1.2)$$

Diese Wellenfunktionen sind auch Eigenzustände des kanonischen Impulses \vec{p} , der gleich dem Driftimpuls eines klassischen Elektron ist, aber sie sind nicht Eigenzustände der Energie. Die Volkov-Zustände sind vielmehr eine Superposition von Energieeigenzuständen, deren Abstand die Laserfrequenz ist. Das Spektrum eines Volkov-Zustands ist daher eine Reihe von Linien in der Region der klassischen Driftenergie. Dies kann man auch an der Fourier-Entwicklung von (1.2) erkennen,

$$\begin{aligned} \psi_{Vol}(\vec{x}, t) = \exp & \left\{ \frac{i}{\hbar} \left[\vec{p} \cdot \vec{x} - \frac{p^2 t}{2m_e} - U_p \right] \right\} \\ & \times \sum_{n=-\infty}^{\infty} \sum_{m=-\infty}^{\infty} J_m \left(\frac{e^2 A_0^2}{8\hbar\omega m_e c^2} \right) J_{n-2m} \left(|\vec{\epsilon} \cdot \vec{p}| \frac{e A_0}{\hbar\omega m_e c} \right) e^{in\omega t}, \end{aligned} \quad (1.3)$$

wobei J_m die zylindrischen Bessel-Funktionen sind und $U_p = e^2 A_0^2 / 4m_e c^2$ ist. Im nächsten Abschnitt wird deutlich, daß wegen der Form des Energiespektrums die Volkov-Zustände mit den Zuständen der durch „Above-Threshold“-Ionisation freigesetzten Elektronen zusammenhängen.

Ein anderer Parameter, der in der Literatur häufig Verwendung findet, ist der sogenannte „Keldysh-Parameter“ [3]

$$\gamma = \sqrt{\frac{E_{ip}}{2U_p}}. \quad (1.4)$$

Er kann als Tunnelzeit in Einheiten der Laserperiodendauer interpretiert werden. Wenn $\gamma < 1$ ist, ist Tunnelionisation der vorherrschende Prozeß. Mit $\gamma > 1$ spricht man vom Multiphotonenionisationsregime.

Beispiele für nichtstörungstheoretisches Verhalten von „Above-Threshold“-Ionisation und Harmonischenerzeugung werden in den nächsten zwei Abschnitten gezeigt.

1.1 „Above-Threshold“-Ionisation

„Above-Threshold“-Ionisation bedeutet, daß mehr Photonen als die zur Ionisation nötige Mindestzahl absorbiert werden. Wenn ein starkes Laserfeld anwesend ist, werden wegen des dynamischen Stark-Effektes alle Zustände verschoben. Die Verschiebung der niedrigen Zustände ist relativ klein, die der angeregten Zustände kann jedoch im Vergleich zur Photonenergie sehr groß sein. Das Kontinuum verschiebt sich um die ponderomotorische Energie U_p . In Abbildung 1.3 wird ein Schema gezeigt. Für die „Above-Threshold“-Ionisation kann man eine generalisierte Ionisationsrate

$$\Gamma_{n+s} \propto I^{n+s} \quad (1.5)$$

ansetzen, wobei n die Zahl der Photonen ist, die man ohne Niveauverschiebungen bräuchte, um das Kontinuum zu erreichen, und s die der Photonen darüber hinaus.

Abbildung 1.3: Schema der zeitgemittelten Energieverschiebung der gebundenen Zustände und des Kontinuums in Anwesenheit eines Laserfeldes.

Die entsprechende Erweiterung der Einstein-Photoeffektformel lautet

$$E_f = (n + s)\hbar\omega - E_{ip} \quad (1.6)$$

mit E_{ip} als Ionisationspotential des Atoms und E_f als Energie des freigesetzten Elektrons. „Above-Threshold“-Ionisation kann qualitativ mit einem vereinfachten analytischen Modell beschrieben werden [1]. Die zeitabhängige Schrödinger-Gleichung ist

$$i\hbar \frac{\partial \psi}{\partial t} = \left(\frac{\hat{p}^2}{2m} + V(r) - \underbrace{\frac{e}{mc} A(t) \hat{p} + \frac{e^2 A^2(t)}{2mc^2}}_{H'} \right) \psi, \quad (1.7)$$

und die Wellenfunktion kann als eine Summe über gebundene und freie Zustände geschrieben werden,

$$|\psi(t)\rangle = \sum_n a_n(t) |n\rangle + \int d^3k a_k(t) |k\rangle. \quad (1.8)$$

Die Zeitabhängigkeit der Amplituden $a_n(t)$ und $a_k(t)$ wird durch die folgenden Gleichungen beschrieben,

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{\partial a_n(t)}{\partial t} &= E_n a_n(t) + \sum_n \langle n | H'(t) | m \rangle a_m(t) + \int \langle n | H'(t) | k \rangle a_k(t) d^3k, \\ i\hbar \frac{\partial a_k(t)}{\partial t} &= E_k a_k(t) + \sum_m \langle k | H'(t) | m \rangle a_m(t) + \int \langle k | H'(t) | k' \rangle a_{k'}(t) d^3k'. \end{aligned} \quad (1.9)$$

Nimmt man an, daß das Potential $V(r)$ kurzreichweitig ist, so können die freien Zustände $|k\rangle$ durch ebene Wellen $|p\rangle$ ersetzt werden, und man erhält

$$\int d^3k' \langle k | \mathbf{H}'(t) | k' \rangle a_{k'}(t) \rightarrow \left[-\frac{e}{mc} A(t) \mathbf{p} + \frac{e^2 A^2(t)}{2mc^2} \right] a_p(t) = \mathbf{H}'(t) a_p(t). \quad (1.10)$$

Analog behandelt man die Kopplung von gebundenen und freien Zuständen. Partielle Integration liefert

$$a_p(t) \approx \sum_m \phi_m(p) \int_0^t \exp \left[\frac{i}{\hbar} \int_0^\tau dt' \mathbf{H}'(t') \right] \frac{d}{d\tau} \left[a_m(\tau) \exp \left[\frac{i \mathbf{p}^2 \tau}{2m\hbar} \right] \right] d\tau. \quad (1.11)$$

Wenn man die Keldysh-Näherung $a_m(\tau) \approx \delta_{im} \exp[-iE_i \tau \hbar]$ benutzt, erhält man mit $E_i = -E_{ip}$

$$a_p(\tau) \approx \frac{i}{\hbar} \phi_i(p) \left(\frac{\mathbf{p}^2}{2m} - E_i \right) \times \int_0^t \exp \left[\frac{i\tau}{\hbar} \left(\frac{\mathbf{p}^2}{2m} - E_i \right) \right] \exp \left[\frac{i}{\hbar} \int_0^\tau dt' \mathbf{H}'(t') \right] d\tau. \quad (1.12)$$

Für ein zirkular polarisiertes Lasefeld kann der Endzustand mit Hilfe der Bessel-Funktionen geschrieben werden als

$$a_p(t) \approx \frac{i}{\hbar} \Phi_i(p) \left(\frac{\mathbf{p}^2}{2m} - E_i \right) \sum_{-\infty}^{+\infty} \exp[in\alpha] J_n(x) \times \int_0^t \exp \left[\frac{i\tau}{\hbar} \left(\frac{\mathbf{p}^2}{2m} - E_i + U_p - n\hbar\omega \right) \right] d\tau, \quad (1.13)$$

wobei im Fall zirkularer Polarisation $x = eA_0 |\mathbf{p}_x + \mathbf{p}_y| / m\hbar\omega$ und $U_p = e^2 A^2 / 2mc^2$ ist. Daher hat das Photoelektronenspektrum Maxima bei

$$E = \frac{\mathbf{p}^2}{2m} = n\hbar\omega + E_i - U_p. \quad (1.14)$$

Wenn man

$$a_m(\tau) \approx \delta_{im} \exp[-iE_i \tau \hbar] \exp[-\gamma_i \tau / 2] \exp[-i\delta\omega_i \tau] \quad (1.15)$$

ansetzt, erhält man eine Reihe von Stark-verschobenen, Lorentz-förmigen Linien der

Breite $\hbar\gamma_i$,

$$|a_p|^2 \approx \left[\left(\frac{p^2}{2m} - E_i + \hbar\delta\omega_i \right)^2 + \frac{(\hbar\gamma_i)^2}{4} \right] |\Phi_i(p)|^2 \times \sum_{n=-\infty}^{\infty} J_n^2(x) \left[\left(\frac{p^2}{2m} - E_i + \hbar\delta\omega_i - n\hbar\omega \right)^2 + \frac{(\hbar\gamma_i)^2}{4} \right]^{-1}. \quad (1.16)$$

In Wirklichkeit zeigen typische ATI-Spektren weitere Strukturen, die kaum im Rahmen analytischer Modelle erfaßt werden können, z.B. Plateaus und Intensitätsschwankungen (Beispiele werden im Kapitel über die numerischen Simulationen gezeigt).

1.2 Harmonischenerzeugung

Die Erzeugung von Harmonischen steht in Verbindung mit „Above-Threshold“-Ionisation. In der Tat kann das Elektron, wenn es viele Photonen absorbiert hat, sowohl das Atom verlassen, d.h. das Atom wird ionisiert, als auch mit dem Atom rekombinieren. Im ersten Fall hat man Multiphotonenionisation, im zweiten Fall Abstrahlung von Harmonischen. Dieser Zusammenhang zwischen Ionisation und Harmonischenerzeugung wird im sog. „Atomic Antenna“-Modell deutlich [4, 5]. Dort wird die Wahrscheinlichkeit, daß eine Harmonische erzeugt wird, als Funktion der verschiedenen ATI-Prozessamplituden ausgedrückt. Dasselbe ist auch mit ähnlichen Modellen von anderen Autoren beschrieben worden [6, 7]. In der Literatur gibt es ein anderes bekanntes Modell, das sog. Dreischrittmodell („three-step model“) [8]. In diesem Modell wird unter gewissen vereinfachenden Annahmen die quantenmechanische Amplitude dafür, daß das Elektron zuerst freigesetzt, sich dann im Laserfeld bewegt und anschließend rekombiniert, ausgewertet. Wenn die Laserfrequenz nicht zu hoch ist, kann man mit einem klassischen Modell den „Cut-off“ des Harmonischenspektrums vorhersagen [9]. Man betrachtet eine klassisches geladenes Punktteilchen, das sich in einem Laserfeld bewegt. Wenn man die Anfangsgeschwindigkeit gleich null annimmt, erhält man für Beschleunigung, Geschwindigkeit und

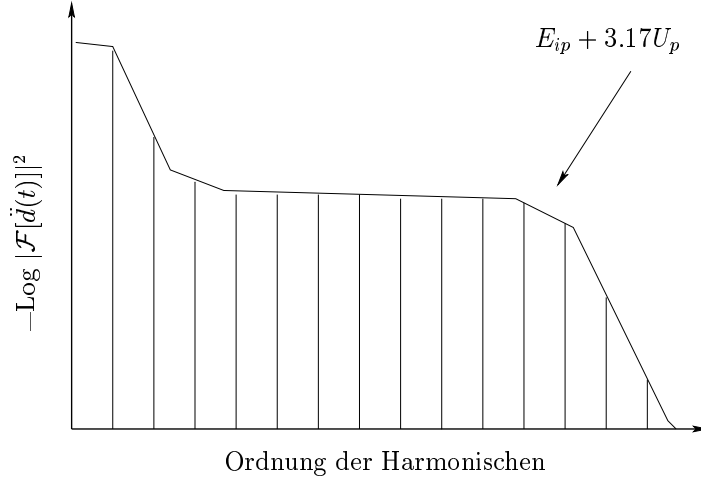


Abbildung 1.4: Struktur eines Harmonischenspektrums mit Plateau. Der „Cut-off“ liegt bei $I_p + 3.17U_p$, wobei I_p das Ionisationpotential und U_p das ponderomotorische Potential sind.

Ort

$$m \ddot{x} = eE \sin(\omega t), \quad (1.17)$$

$$m \dot{x} = -\frac{eE}{\omega} \cos(\omega t) + \frac{eE}{\omega} \cos(\omega t_0), \quad (1.18)$$

$$m x = -\frac{eE}{\omega^2} \sin(\omega t) + \frac{eE}{\omega^2} \sin(\omega t_0) + (t - t_0) \frac{eE}{\omega} \cos(\omega t_0), \quad (1.19)$$

wobei t_0 die Zeit ist, zu der das Elektron das Atom verlassen hat. Das atomare Potential wird für Zeiten $t > t_0$ vernachlässigt. Aus der Geschwindigkeit kann man die kinetische Energie eines Elektrons zur Zeit t berechnen,

$$E_{kin} = \underbrace{\frac{e^2 E^2}{2m\omega^2}}_{2U_p} [\cos^2(\omega t) + \cos^2(\omega t_0) - 2\cos(\omega t)\cos(\omega t_0)]. \quad (1.20)$$

Man sieht, daß die Energie von t_0 und t abhängt, aber nicht alle Paare (t_0, t) führen zu Rekombination. Um Harmonische zu erzeugen, muß das Elektron zurück zum Atom kommen. Man betrachtet daher nur Zeitpaare (t_0, t) , für die die rechte Seite

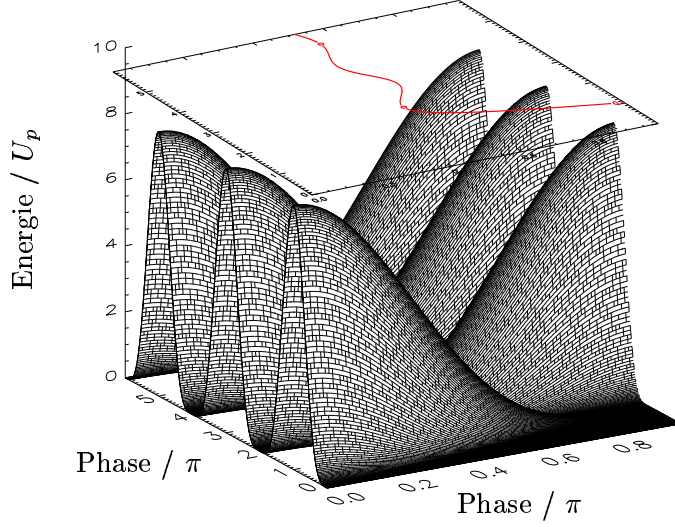


Abbildung 1.5: Die Energie eines klassischen Punktteilchens als Funktion von $\varphi_0 = \omega t_0$ und $\varphi = \omega t$ nach Gleichung (1.20). Oben ist die Linie der (φ_0, φ) -Paare eingezeichnet, für die der Ort des Teilchens der Koordinatenursprung ist.

in Gleichung (1.19) null ist.

Dies führt zu einer transzendenten Gleichung, die mit graphischen Methoden gelöst werden kann. Man kann z.B. die Konturlinie für den Wert null zeichnen. Aus der Gleichung (1.20) kann man für alle in Frage kommenden (t_0, t) -Paare die höchstmögliche Energie für ein ausgestrahltes Photon ermitteln, $\mathcal{E}_{max} = E_{kin,max} + E_{ip}$. Diese Methode wird in den Abbildungen 1.5 und 1.6 illustriert. Es stellt sich heraus, daß die höchste Harmonische bei

$$\mathcal{E}_{max} = 3.17U_p + E_{ip} \quad (1.21)$$

zu erwarten ist. In Abbildung 1.4 ist der zugehörige Cut-off eingezeichnet. Solch Analysen von Multiphotonenprozessen, die lediglich auf den klassischen Bewegungsgleichungen basieren, werden in diesem Zusammenhang als „Simple Man’s“-Theorie bezeichnet [9].

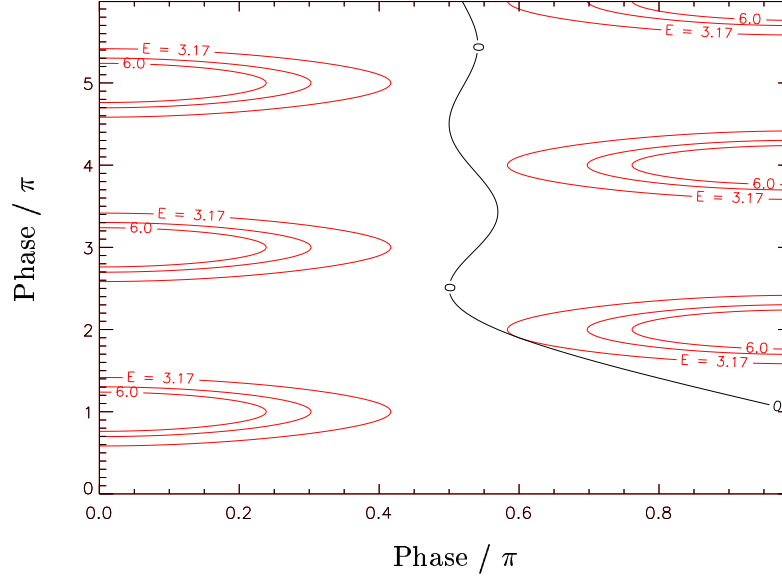


Abbildung 1.6: Konturlinien der Energie des Punktes zusammen mit den Paaren (φ_0, φ) , die die Harmonischenerzeugung erlauben. Man sieht, daß die höchste Energie gleich $3.17U_p$ ist.

1.3 Adiabatische Stabilisierung

Die adiabatische Stabilisierung von Atomen in sehr intensiven Laserfeldern wurde von Gersten und Mittleman [10, 11] vorhergesagt. Sie wird in numerischen Simulationen beobachtet, wenn man intensive Laserfelder mit hoher Frequenz (im Vergleich zum Ionisationspotential) benutzt. Um den Stabilisierungsmechanismus zu verstehen, ist es günstig auf das Bezugssystem eines frei im Laserfeld schwingenden Elektrons zu wechseln. Wegen der hohen Frequenz des Laserfeldes kann man dann das schwingende Kernpotential über die Zeit mitteln. Für ein eindimensionales Modellpotential hat man z.B.

$$V(r) = -\frac{A}{\sqrt{x^2 + \beta}} \quad \Rightarrow \quad V(r) = -\frac{\omega}{2\pi} \int_0^{\frac{2\pi}{\omega}} \frac{A \, dt}{\sqrt{[x + \alpha \sin(\omega t)]^2 + \beta}}. \quad (1.22)$$

A und β sind zwei Modellpotentialparameter und α ist die klassische Schwingungsam-

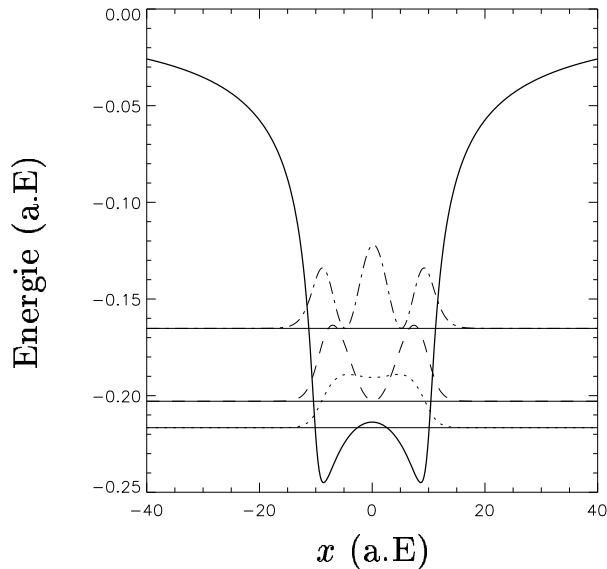


Abbildung 1.7: Zeitgemitteltetes Potential mit den ersten drei Zuständen. β ist 1.9 und die Laserfrequenz ist 2.5 (in atomaren Einheiten). Die Doppelmuldenstruktur ist deutlich sichtbar.

plitude. Das zeitgemittelte Potential ist in Abbildung 1.7 gezeigt [12]. Das Elektron „sieht“ ein Doppelmuldenpotential, in dem es gebundene Zustände besetzen kann. Die drei niedrigsten Zustände samt Wahrscheinlichkeitsdichte sind in Abbildung 1.8 mit eingezeichnet. Der Wechsel des Bezugssystems kann einfach auf zwei oder drei Dimensionen verallgemeinert werden. Einige Autoren [13] diskutieren stabilisierte Atome sogar als „neue Art von Materie“. Jedoch wurden bisher nur wenige Experimente durchgeführt [14]. Dies liegt hauptsächlich daran, daß die erforderlichen Bedingungen, nämlich hochfrequente Laserstrahlung hoher Intensität noch nicht hergestellt werden können.

Effekte, die der adiabatischen Stabilisierung entgegenwirken, sind Elektronenkorrelation und das Magnetfeld des Lasers ($\vec{v} \times \vec{B}$ -Kraft). Die Rolle der Korrelation wurde in [15] untersucht. Es scheint, daß obwohl eine allgemeine Erhöhung der Ionisation beobachtet wurde, die Stabilisierung überlebt, solange eine ausreichend hohe Frequenz benutzt wird (höher als die Ionisationspotentiale aller beteiligten Elektronen). Die destabilisierende Wirkung des Magnetfeldes wurde in [16] studiert.

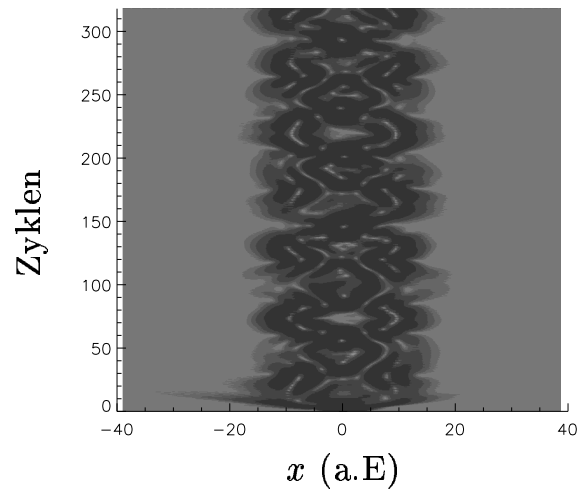


Abbildung 1.8: Wahrscheinlichkeitsdichte während des Pulses. Das Bezugssystem ist das des freien Elektrons. Man beobachtet Rabi-Floppings zwischen den in Abbildung 1.7 gezeigten Zuständen.

Kapitel 2

Simulationen von Multiphotonenprozessen

2.1 Der Algorithmus

Numerische Simulationen von Atomen in Laserfeldern können mit vielen verschiedenen numerischen Methoden durchgeführt werden. Die Methoden unterscheiden sich durch den Propagationsalgorithmus und durch den Raum, in dem die Wellenfunktion dargestellt wird. Die benutzte Basis spielt eine sehr wichtige Rolle. Wenn z.B. eine angemessene Basis gewählt wird, braucht man in der Entwicklung der Wellenfunktion nur wenige Terme und die Simulationen laufen schneller. Dies ist besonders wichtig, wenn man zwei- oder dreidimensionale Simulationen durchführt. Neben Raum, bzw. Basis und dem Propagator, spielt auch die Eichung eine Rolle. Die zwei häufig benutzten Eichungen, die Längen- und die Geschwindigkeitseichung, sind numerisch unterschiedlich aufwendig. Dies hängt damit zusammen, daß im ersten Fall der kanonische Impuls gleich dem kinetischen Impuls ist und im zweiten Fall der Oszillationsimpuls bereits wegtransformiert wurde, so daß der kanonische Impuls dem Driftimpuls entspricht. In Längeneichung ändert sich die Phase der Wellenfunktion daher schneller als in Geschwindigkeitseichung, und ein feinerer Zeitschritt ist nötig. Außerdem nimmt in Längeneichung das Potential mit wachsender Entfernung vom Atom zu. Dies kann problematisch werden, wenn man große Raumgitter

braucht, z.B. für die Berechnung von „Above-Threshold“-Ionisation (mehr Details werden im nächsten Abschnitt beschrieben). Daher ist die Geschwindigkeitseichung normalerweise vorzuziehen.

Die numerischen Resultate, die in dieser Arbeit gezeigt werden, wurden mit der von Muller [17] beschriebenen Methode erhalten. Diese Methode soll nun für den Fall der zeitabhängigen Schrödinger-Gleichung eines Elektrons unter dem Einfluß des Kernpotentials und eines linear polarisierten Laserfeldes [17] beschrieben werden.

Im folgenden werden atomare Einheiten benutzt. Die Schrödinger-Gleichung in Dipolnäherung und Geschwindigkeitseichung ist durch

$$i\partial_t \Psi(\mathbf{r}, t) = \left(-\frac{1}{2} \nabla^2 + V(r) - iA(t)\partial_z \right) \Psi(\mathbf{r}, t) \quad (2.1)$$

gegeben. Der A^2 -Term wurde wegtransformiert. Das Laserfeld ist in z -Richtung polarisiert.

Wenn die Wellenfunktion in Kugelflächenfunktionen entwickelt wird, d.h.

$$\Psi(r, \vartheta, \varphi) = \sum_{\ell=0}^{\infty} \sum_{m=-\ell}^{\ell} \frac{1}{r} \Phi_{\ell m}(r, t) Y_{\ell}^m(\vartheta, \varphi), \quad (2.2)$$

erhält man

$$\begin{aligned} i\partial_t \Phi_{\ell m}(r, t) = & \left(-\frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial r^2} + V_{\ell}^{\text{eff}}(r) \right) \Phi_{\ell m}(r, t) \\ & - iA(t)r \sum_{\ell' m'} \langle Y_{\ell}^m | \cos \vartheta | Y_{\ell'}^{m'} \rangle \partial_r \frac{1}{r} \Phi_{\ell' m'}(r, t) \\ & + iA(t) \sum_{\ell' m'} \langle Y_{\ell}^m | \sin \vartheta \partial_{\vartheta} | Y_{\ell'}^{m'} \rangle \frac{1}{r} \Phi_{\ell' m'}(r, t), \end{aligned} \quad (2.3)$$

wobei $V_{\ell}^{\text{eff}}(r) = V(r) + \frac{\ell(\ell+1)}{2r^2}$ und $\langle Y_{\ell}^m | \cdots | Y_{\ell'}^{m'} \rangle = \int \int d\vartheta d\varphi \sin \vartheta \cdots$. Im Fall

$m \neq m'$ sind alle Terme in (2.3) null. Daher folgt

$$\begin{aligned} i\partial_t \Phi_\ell(r, t) &= \left(-\frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial r^2} + V_\ell^{\text{eff}}(r) \right) \Phi_\ell(r, t) \\ &\quad - iA(t)r \sum_{\ell'} \langle Y_\ell | \cos \vartheta | Y_{\ell'} \rangle \partial_r \frac{1}{r} \Phi_{\ell'}(r, t) \\ &\quad + iA(t) \sum_{\ell'} \langle Y_\ell | \sin \vartheta \partial_\vartheta | Y_{\ell'} \rangle \frac{1}{r} \Phi_{\ell'}(r, t), \end{aligned} \quad (2.4)$$

mit $\langle Y_\ell | \cdots | Y_{\ell'} \rangle$ als $2\pi \int d\vartheta \sin \vartheta \cdots$, und m bleibt erhalten. Für den zweiten Term hat man

$$\begin{aligned} r \sum_{\ell'} \langle Y_\ell | \cos \vartheta | Y_{\ell'} \rangle \partial_r \frac{1}{r} \Phi_{\ell'}(r, t) \\ = \left(\frac{\ell}{\sqrt{(2\ell-1)(2\ell+1)}} \partial_r \Phi_{\ell-1}(r, t) + \frac{\ell+1}{\sqrt{(2\ell+1)(2\ell+3)}} \partial_r \Phi_{\ell+1}(r, t) \right) \\ - \frac{1}{r} \left(\frac{\ell}{\sqrt{(2\ell-1)(2\ell+1)}} \Phi_{\ell-1}(r, t) + \frac{\ell+1}{\sqrt{(2\ell+1)(2\ell+3)}} \Phi_{\ell+1}(r, t) \right) \end{aligned} \quad (2.5)$$

und ähnlich für den dritten

$$\begin{aligned} \sum_{\ell'} \langle Y_\ell | \sin \vartheta \partial_\vartheta | Y_{\ell'} \rangle \frac{1}{r} \Phi_{\ell'}(r, t) \\ = \frac{1}{r} \left(\frac{\ell(\ell-1)}{\sqrt{(2\ell-1)(2\ell+1)}} \Phi_{\ell-1}(r, t) - \frac{(\ell+1)(\ell+2)}{\sqrt{(2\ell+1)(2\ell+3)}} \Phi_{\ell+1}(r, t) \right). \end{aligned} \quad (2.6)$$

Daher wird Gleichung (2.4) zu

$$\begin{aligned}
i\partial_t \Phi_\ell(r, t) &= \left(-\frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial r^2} + V_\ell^{\text{eff}}(r) \right) \Phi_\ell(r, t) \\
&- iA(t) \left(\frac{\ell}{\sqrt{(2\ell-1)(2\ell+1)}} \partial_r \Phi_{\ell-1}(r, t) + \frac{\ell+1}{\sqrt{(2\ell+1)(2\ell+3)}} \partial_r \Phi_{\ell+1}(r, t) \right. \\
&\quad \left. - \frac{1}{r} \frac{\ell^2}{\sqrt{(2\ell-1)(2\ell+1)}} \Phi_{\ell-1}(r, t) + \frac{1}{r} \frac{(\ell+1)^2}{\sqrt{(2\ell+1)(2\ell+3)}} \Phi_{\ell+1}(r, t) \right). \quad (2.7)
\end{aligned}$$

In Matrixschreibweise kann man Gleichung (2.7) als

$$\begin{aligned}
i\partial_t \Phi(r, t) &= H_{\text{at}} \Phi(r, t) \\
&- iA(t) \underbrace{\begin{pmatrix} 0 & \frac{1}{\sqrt{3}} & 0 & 0 & \dots \\ \frac{1}{\sqrt{3}} & 0 & \frac{2}{\sqrt{15}} & 0 & \\ 0 & \frac{2}{\sqrt{15}} & 0 & \frac{3}{\sqrt{35}} & \\ \vdots & & \frac{3}{\sqrt{35}} & & \end{pmatrix}}_{H_{\text{mix}}} \partial_r \Phi(r, t) \quad (2.8) \\
&- i \frac{A(t)}{r} \underbrace{\begin{pmatrix} 0 & \frac{1}{\sqrt{3}} & 0 & 0 & \dots \\ -\frac{1}{\sqrt{3}} & 0 & \frac{4}{\sqrt{15}} & 0 & \\ 0 & -\frac{4}{\sqrt{15}} & 0 & \frac{9}{\sqrt{35}} & \\ \vdots & & -\frac{9}{\sqrt{35}} & & \end{pmatrix}}_{H_{\text{ang}}} \Phi(r, t) \\
&= (H_{\text{at}} + H_{\text{mix}} + H_{\text{ang}}) \Phi(r, t),
\end{aligned}$$

mit $H_{\text{at}} = -\frac{1}{2} \nabla^2 + V^{\text{eff}}(r)$, schreiben. Jeder Eintrag im Vektor $\Phi(r, t)$ entspricht einer Komponente des Drehimpulses, welche r - und t -abhängig ist. Die radiale Koordinate wird diskretisiert, d.h.

$$r_n = n\Delta r, \quad n = 1, 2, 3, \dots, N.$$

Nun soll die Struktur der verschiedenen Teile des Hamilton-Operators

$$\mathbf{H} = \mathbf{H}_{\text{at}} + \mathbf{H}_{\text{mix}} + \mathbf{H}_{\text{ang}},$$

die im r -Raum und ℓ -Raum wirken, untersucht werden. H_{at} ist eine diagonale Matrix im ℓ -Raum, H_{ang} ist diagonal im r -Raum, aber H_{mix} ist in beiden Räumen nicht-diagonal. Die Matrizen in (2.8) können in einer Summe geschrieben werden, in der jeder Term eine Matrix ist, die in einem zweidimensionalen ℓ -Unterraum wirkt, d.h. sie koppelt die ℓ -te mit der $\ell + 1$ -ten Komponente der Wellenfunktion:

$$\begin{aligned} \mathbf{H}_{\text{mix}} = \sum_{\ell} \mathbf{H}_{\text{mix}}^{\ell} \quad \text{wo} \quad \mathbf{H}_{\text{mix}}^{\ell} \begin{pmatrix} \Phi_{\ell}(r, t) \\ \Phi_{\ell+1}(r, t) \end{pmatrix} &= -iA(t) \begin{pmatrix} 0 & c_{\ell} \\ c_{\ell} & 0 \end{pmatrix} \partial_r \begin{pmatrix} \Phi_{\ell}(r, t) \\ \Phi_{\ell+1}(r, t) \end{pmatrix} \\ \mathbf{H}_{\text{ang}} = \sum_{\ell} \mathbf{H}_{\text{ang}}^{\ell} \quad \text{wo} \quad \mathbf{H}_{\text{ang}}^{\ell} \begin{pmatrix} \Phi_{\ell}(r, t) \\ \Phi_{\ell+1}(r, t) \end{pmatrix} &= -\frac{iA(t)}{r} \begin{pmatrix} 0 & t_{\ell} \\ -t_{\ell} & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \Phi_{\ell}(r, t) \\ \Phi_{\ell+1}(r, t) \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (2.9)$$

mit

$$c_{\ell} = \frac{\ell + 1}{\sqrt{(2\ell + 1)(2\ell + 3)}}, \quad t_{\ell} = \frac{(\ell + 1)^2}{\sqrt{(2\ell + 1)(2\ell + 3)}}$$

2.1.1 Diskretisierung der Ortsableitungen

Um eine hohe Genauigkeit der Berechnungen zu gewährleisten, ist eine geschickte Diskretisierung der Ortsableitungen zu wählen. Die Ortsableitungen in \mathbf{H}_{at} und \mathbf{H}_{ang} wurden mit einer Diskretisierung vierter Ordnung in Δr approximiert.

Für die zweite Ableitung wurde die Numerov-Näherung benutzt, d.h. für eine Funktion f hat man

$$f'' = -2M_2^{-1} \Delta_2 f \quad (2.10)$$

wo $\Delta_2 f = (f_{n+1} - 2f_n + f_{n-1})/h^2$, $h = \Delta r$ und

$$\mathbf{M}_2 = -\frac{1}{6} \begin{pmatrix} 10 & 1 & 0 & \cdots \\ 1 & 10 & 1 & \\ 0 & 1 & 10 & 1 \\ \vdots & & & \ddots \end{pmatrix}$$

sind. Für die erste Ableitung wurde die Simpson-Näherung

$$f' = \mathbf{M}_1^{-1} \Delta_1 f \quad (2.11)$$

angewandt, wo $\Delta_1 f = (f_{n+1} - f_{n-1})/2h$ und

$$\mathbf{M}_1 = \frac{1}{6} \begin{pmatrix} 4 & 1 & 0 & \cdots \\ 1 & 4 & 1 & \\ 0 & 1 & 4 & 1 \\ \vdots & & & \ddots \end{pmatrix}$$

sind. Die Matrizes $\mathbf{M}_1, \mathbf{M}_2, \Delta_1$ und Δ_2 wirken nur im r -Raum und kommutieren mit solchen, die nur im ℓ -Raum wirken. Den Hamilton-Operator kann man als

$$\mathbf{H} = \mathbf{H}_{\text{at}} + \sum_{\ell=0}^{L-2} (\mathbf{H}_{\text{mix}}^\ell + \mathbf{H}_{\text{ang}}^\ell), \quad (2.12)$$

schreiben, wobei

$$\mathbf{H}_{\text{at}} = \mathbf{1}_\ell \otimes (\tilde{\mathbf{M}}_2^{-1} \tilde{\Delta}_2 + \mathbf{V}_{\text{eff}}^\ell), \quad (2.13)$$

$$\mathbf{H}_{\text{mix}}^\ell = -\underbrace{\mathrm{i}A(t) \begin{pmatrix} 0 & c_\ell \\ c_\ell & 0 \end{pmatrix}}_{\mathbf{L}_\ell} \otimes \tilde{\mathbf{M}}_1^{-1} \tilde{\Delta}_1 = -\mathrm{i}A(t) \mathbf{L}_\ell \otimes \tilde{\mathbf{M}}_1^{-1} \tilde{\Delta}_1, \quad (2.14)$$

$$\mathbf{H}_{\text{ang}}^\ell = -\underbrace{\mathrm{i}A(t) \begin{pmatrix} 0 & t_\ell \\ -t_\ell & 0 \end{pmatrix}}_{\mathbf{T}_\ell} \otimes \frac{1}{r_n} \mathbf{1}_r = -\mathrm{i}A(t) \mathbf{T}_\ell \otimes \frac{1}{r_n} \mathbf{1}_r. \quad (2.15)$$

$\mathbf{1}_\ell$ und $\mathbf{1}_r$ sind Einheitsmatrizen im ℓ - bzw. r -Raum. Die Matrizen $\tilde{\mathbf{M}}_i$ und $\tilde{\Delta}_i$ sind modifizierte Matrizen \mathbf{M}_i und Δ_i , die berücksichtigen, daß im Fall $\ell = 0$ für ein Coulomb-Potential $-Z/r$ bei $r_0 = 0$

$$\Phi_0''(0, t) = -2Z\Phi_0'(0, t) \neq 0$$

gilt. Um die Unitarität der Propagation nicht zu zerstören, muß man die Hermitizität von $\tilde{\mathbf{M}}_2^{-1}\tilde{\Delta}_2$ gewährleisten. Dies kann mit den folgenden Änderungen erfüllt werden:

$$\begin{aligned} (\tilde{\Delta}_2)_{1,1} &= -\frac{2}{h^2} \left(1 - \frac{Zh}{12 - 10Zh} \right), \\ (\tilde{\mathbf{M}}_2)_{1,1} &= -2 \left(1 + \frac{h^2}{12} (\tilde{\Delta}_2)_{1,1} \right). \end{aligned}$$

Die anderen Einträge der Matrizen \mathbf{M}_2 und Δ_2 bleiben gleich. Ähnliche Änderungen sind für die Matrizen \mathbf{M}_1 und Δ_1 nötig, weil der Operator $\tilde{\mathbf{M}}_1^{-1}\tilde{\Delta}_1$ anti-hermitesch sein muß, um eine unitäre Propagation zu gewährleisten. Die modifizierten Matrizen $\tilde{\mathbf{M}}_1$ und $\tilde{\Delta}_1$ lauten

$$\tilde{\mathbf{M}}_1 = \frac{1}{6} \begin{pmatrix} 4+x & 1 & & & \\ & 1 & 4 & 1 & \\ & & \cdot & \cdot & \cdot \\ & & & 1 & 4 & 1 \\ & & & & 1 & 4+x' \end{pmatrix}, \quad \tilde{\Delta}_1 = \frac{1}{2h} \begin{pmatrix} y & 1 & & & \\ -1 & 0 & 1 & & \\ & \cdot & \cdot & \cdot & \\ & & -1 & 0 & 1 \\ & & & -1 & y' \end{pmatrix}$$

mit $x = \sqrt{3} - 2$, $x' = y = x$ und $y' = -y$.

2.2 Ergebnisse zu „Above-Threshold“-Ionisation

Die numerische Untersuchung von „Above-Threshold“-Ionisation (ATI) ist besonders aufwendig, da es nötig ist, die Wellenfunktion in einem großen Raumgebiet um das Kernpotential zu propagieren. Wenn man höherdimensionale Simulationen

durchführt, kann dies schnell problematisch werden. Wie oben schon erklärt, ist es in diesem Fall besonders wichtig, ein angemessenes Gitter zu wählen. Um das ATI-Spektrum zu berechnen, muß man die Wellenfunktion am Ende des Laserpulses speichern und ihre Energiekomponenten auswerten. Diese Berechnung kann mit der von Kulander vorgeschlagenen Methode durchgeführt werden (Anhang B). Ein Beispiel eines Spektrums für die Ionisation des Heliumion wird in Abbildung 2.1 gezeigt. Die Kulander-Methode ist besonders effizient, wenn die (r, l) -Basis benutzt wird, da die Beiträge der verschiedenen l -Komponenten getrennt berechnet werden und dann zusammengezählt werden können.

Wenn die Intensität des Laserpulses erhöht wird, werden mehr Peaks im Spektrum sichtbar, und andere Strukturen, wie Plateaus und Schwingungen in der Einhüllenden, treten auf. In Abbildung 2.2 kann man beobachten, daß die Form eines ATI-Spektrums stark von U_p abhängig ist. Auch der genaue Ort eines Peaks hängt von U_p ab. Wenn das Elektron freigesetzt wird, hat es eine kinetische Energie

$$E_{kin} = N\hbar\omega - (E_{ip} + U_p).$$

Wenn das Elektron den Laserfokus verläßt während der Lasepuls noch andauert, gewinnt es U_p an Energie. Es folgt, daß die Endenergie in diesem Fall

$$E_{kin} = N\hbar\omega - E_{ip}$$

ist. Wenn der Laserpuls jedoch kurz ist, hat das Elektron nicht genug Zeit, um den Laserfokus zu verlassen und U_p aufzunehmen. Es folgt, daß für ein gegebenes N , d.h. für einen gegebenen Kanal, der Ort des entsprechenden Peaks im Spektrum vom Emissionsort abhängt, an dem das Elektron freigesetzt wurde. Falls der Fokusquerschnitt breit ist, gibt es dann eine Verschmierung der Maxima. In Abbildung 2.3 werden die Verschiebungen der ATI-Peaks als Funktion der Frequenz und der ponderomotorischen Energie dargestellt. Die Einheit der Verschiebung ist der Abstand zwischen zwei Peaks, d.h., wenn die Verschiebung größer als 0.5 ist, wird das Auflösen definierter ATI-Peaks im Spektrum schwierig. Ein Beispiel für das Ausschmieren eines ATI-Spektrums wegen eines endlichen Laserfokus ist in Abbildung

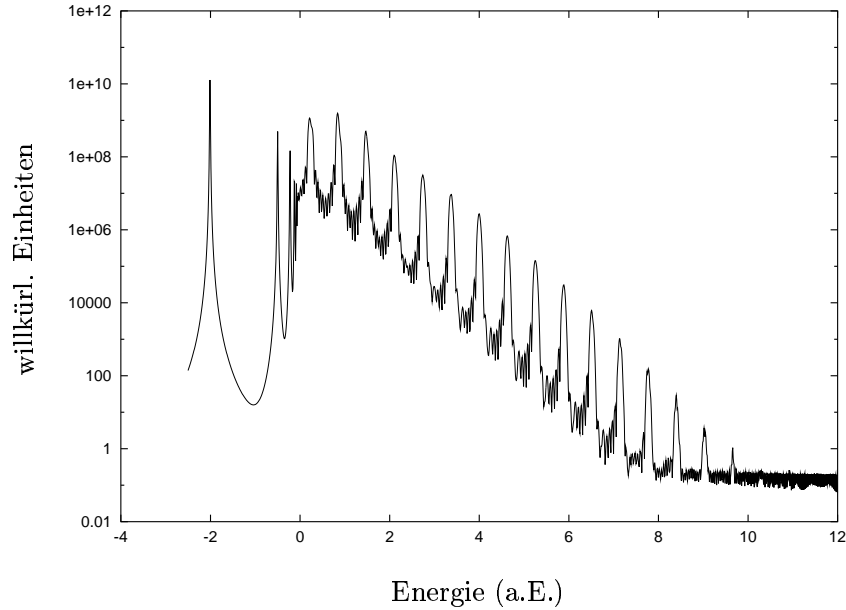


Abbildung 2.1: Beispiel eines ATI-Spektrums. Die Berechnung ist für ein Heliumion durchgeführt. Bei -2.0 a.u. liegt der Grundzustand und zwischen -2.0 und 0 die höheren gebundenen Zustände. Im Kontinuum sieht man die ATI-Maxima. Fast zwölf Größenordnungen in der Ausbeute sind sichtbar. Solch eine hohe Auflösung ist nur durch eine akuraten Propagation der Wellenfunktion möglich.

2.4 gezeigt.

2.3 Ergebnisse zur Harmonischenerzeugung

Um ein aussagekräftiges Harmonischenspektrum zu erhalten, ist es wichtig, einige Punkte zu berücksichtigen. Eine Harmonische hoher Ordnung bedeutet, daß viele Photonen absorbiert wurden. Es ist klar, daß, wenn Ionisation vorherrscht, die Harmonischenerzeugung ineffektiv wird. Harmonische können am besten produziert werden, wenn die Laserfrequenz klein im Vergleich zum Ionisationspotential ist. Dann können mehr Photonen absorbiert werden, ohne die Ionisation zu erhöhen. Aus der „Simple-Man’s“-Regel (1.21) für den Cut-off im Harmonischenspektrum erwartet man, daß bei hohen Ionisationspotentialen und niedrigen Laserfrequenzen am besten hohe Harmonische erzeugt werden.

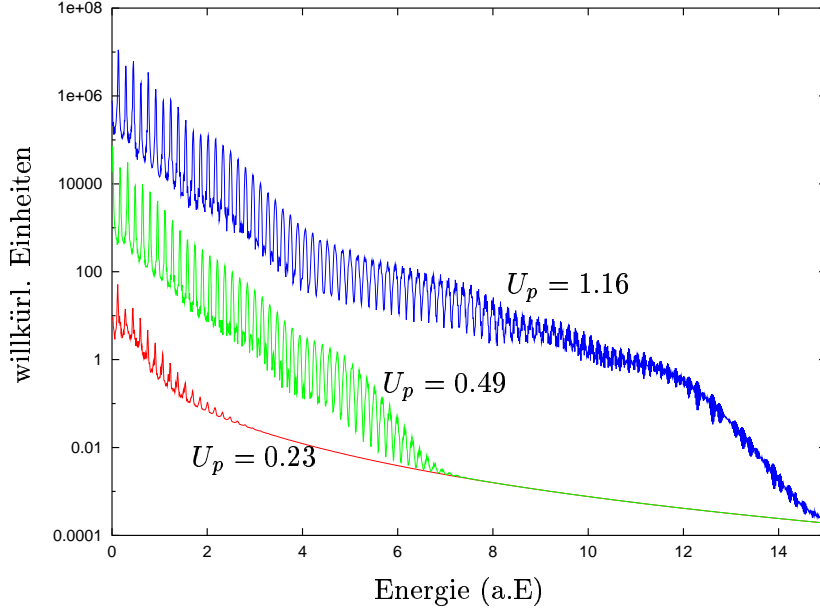


Abbildung 2.2: ATI-Spektren für drei verschiedene Intensitäten, d.h. drei Werte von U_p . Man bemerkt, daß sich mit steigender Laserintensität ein Plateau ausbildet.

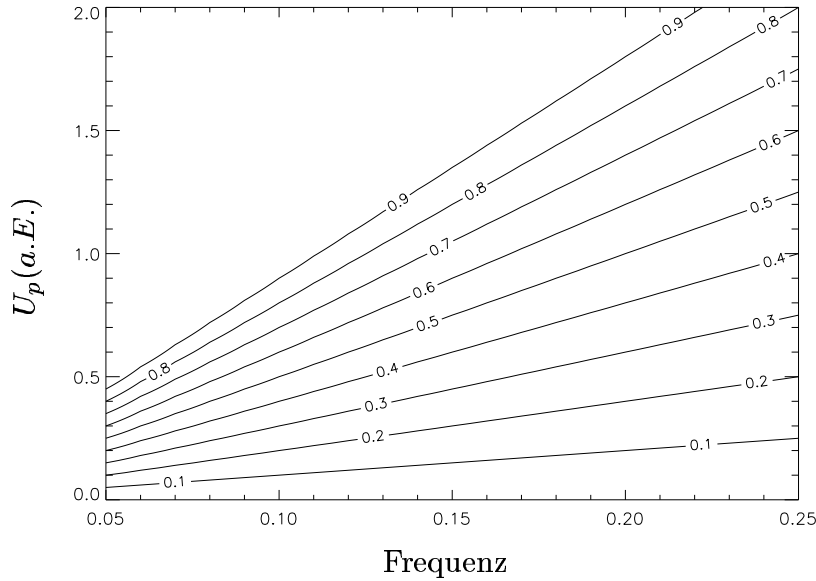


Abbildung 2.3: Konturlinien der ATI-Verschiebung als Funktion der ponderomotorischen Energie und der Frequenz. Die Konturlinienbeschriftung gibt die Verschiebung in Einheiten von $\hbar\omega$ an (Abstand zweier ATI-Peaks).

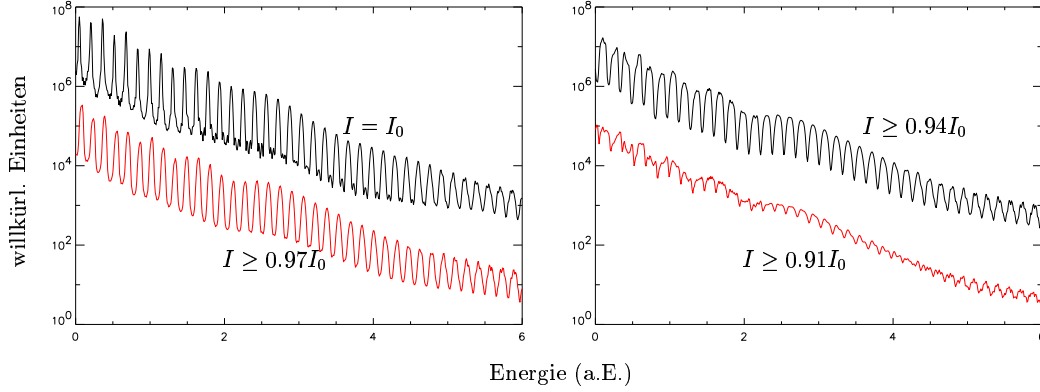


Abbildung 2.4: „Focusing“-Effekt für das ATI-Spektrum. Wenn man das Elektromagnetische Signal über den Fokus integriert, beobachtet man eine Ausschmierung der ATI-Struktur, weil Elektronen, die an verschiedenen Orten freigesetzt wurden, verschiedene Werte von U_p „sehen“.

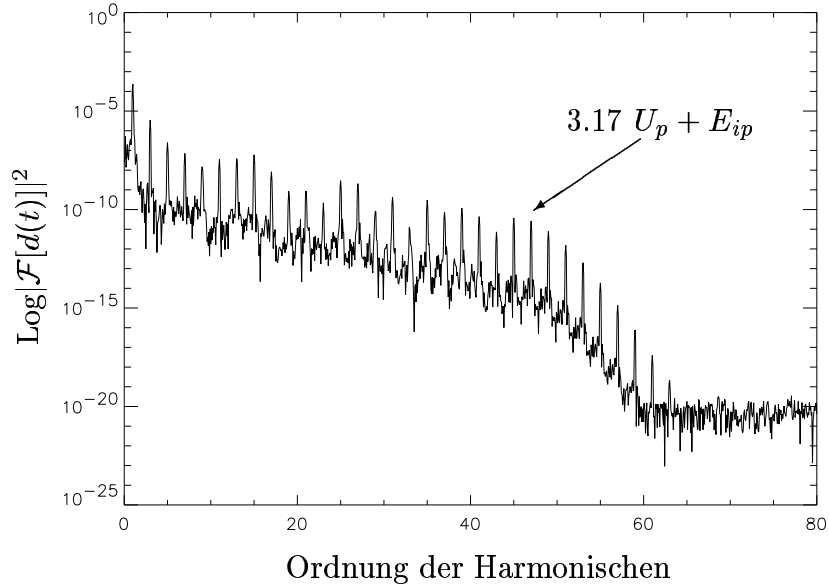


Abbildung 2.5: Beispiel eines Harmonischenspektrums. Die höchste sichtbare Harmonische ist die 63ste. Das Spektrum zeigt ein Plateau und einen „Cut-off“. Der Ort des „Cut-off“ wird in guter Näherung von der „Simple-Man’s“-Theorie vorhergesagt (Kapitel 1).

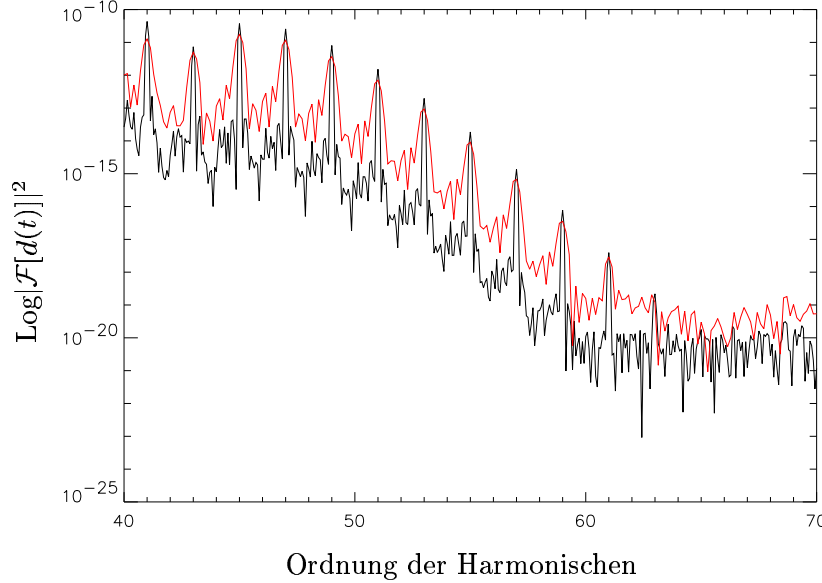
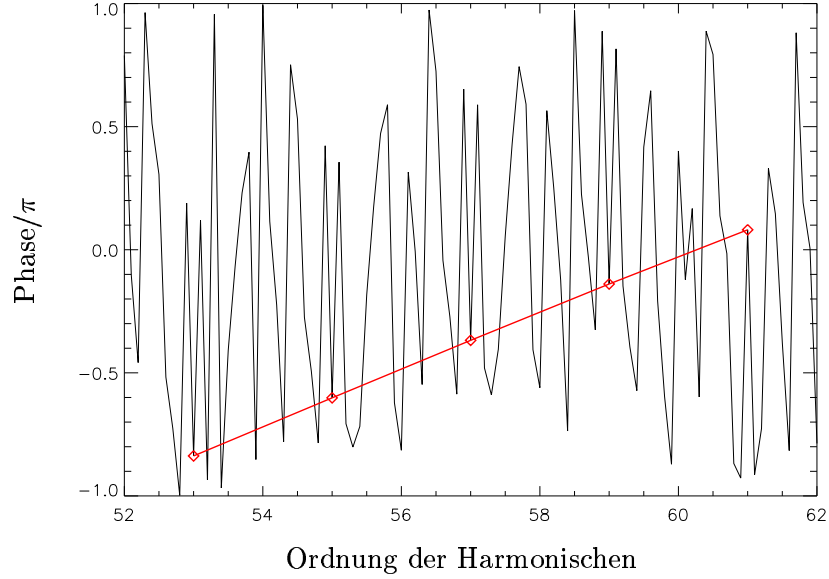


Abbildung 2.6: „Cut-off“-Bereich zweier Harmonischenspektren. Wenn ein kürzerer Laserpuls (20 Zyklen im Vergleich zu 45) benutzt wird (oberes Spektrum), sind die Linienprofile der Harmonischen entlang des „Cut-off“ breiter.

In Abbildung 2.5 wird ein Beispiel eines Harmonischenspektrums aus einer numerischen Simulation gezeigt. Die Auflösung ist mit 15 Größenordnungen sehr hoch. Das gezeigte Spektrum ist durch schnelle Fourier-Transformation (mit „Hanning-Window“ [18]) des zeitaufgelösten Dipolerwartungswertes berechnet worden. Im Vergleich zur „Above-Threshold“-Ionisation ist die Untersuchung der Harmonischen numerisch weniger aufwendig, da ein kleineres Rechnengitter ausreicht.

Um die Zuverlässigkeit des Programms zu überprüfen, wurden einige bekannte Eigenschaften der Harmonischenspektren reproduziert. In Abbildung 2.6 werden die Cut-off-Regionen zweier Harmonischenspektren gezeigt. Wie erwartet [19] werden die Linien dort breiter. Dies ist eine Methode, Attosekundenpulse zu erzeugen [19]. Eine andere bekannte Eigenschaft der Harmonischenspektren ist die lineare Phasenbeziehung zwischen den Harmonischen höchster Energie. Dieses Phänomen tritt nur für diese Linien auf, weil sie aus einem einzigen Kanal heraus erzeugt werden (in „Simple Man’s“-Theorie nur eine relevante Bahn). Im Plateau tragen hingegen viele Bahnen bei und eine feste Phasenbeziehung ist nicht auszumachen. Die zum Spek-



Abbildungung 2.7: Phase der Fourier-Transformierten des Dipols. Die Phasen der Harmonischen im „Cut-off“-Bereich stehen in einer linearen Abhängigkeit, weil für jede Ordnung n nur eine „klassische Bahn“ zur Harmonischenerzeugung beiträgt.

trum in Abbildung 2.6 gehörende Phase in der Cut-off-Region wird in Abbildung 2.7 gezeigt.

2.4 Simulationen in zylindrischer Symmetrie

Für zweidimensionale Simulationen von Systemen, die eine azimuthale diskrete oder kontinuierliche Symmetrie zeigen, ist es angemessen die zylinder Koordinaten (r, φ) zu benutzen. Die schon im Abschnitt 2.1 diskutierte Muller-Methode kann natürlich auch hier angewendet werden. Der wichtigste Unterschied zwischen der Basis $Y_l^m(\theta, \varphi)$ und den Koordinaten (r, φ) ist, daß in $Y_l^m(\theta, \varphi)$ die Abhängigkeit von θ und φ nur durch die Kugelfunktionen Y_l^m gegeben ist, d.h., die numerische Diskretisierung wird nur für die Ortskoordinate r durchgeführt. Die Ableitungen von Y_l^m sind hingegen exakt berücksichtigt. Numerisch ist das zylindrische Gitter (r, φ) dem zweidimensionalen kartesischen Gitter (x, y) ähnlich. In beiden Fälle benötigt man eine numerische Diskretisierung beider Koordinaten. Die Matrizen der Ablei-

tungen sind im Vergleich zu denen in Abschnitt 2.1 diskutierten leicht modifiziert. Wegen der zyklischen Randbedingung $f(r, \varphi_{n+1}) = f(r, \varphi_1)$ sind die linke untere und die rechte obere Ecke der Matrizen besetzt. Dies erfordert einen abgewandelten Algorithmus für die Inversion der Matrizen [18].

Die Benutzung eines Zylindergitters ist sehr günstig, weil kleinere Gitter ausreichen und die Erhaltung der physikalischen Symmetrien gewährleistet ist, wenn z.B. bei einer N -zähligen Symmetrieachse die Anzahl der Gitterpunkte in φ als ganzzahliges Vielfaches von N gewählt wird.

Kapitel 3

Harmonischenerzeugung in ringförmigen Molekülen

3.1 Einleitung

Die Harmonischenerzeugung durch die Wechselwirkung von Atomen mit intensiven Laserfeldern ist ein Thema, das sowohl von theoretischer als auch experimenteller Seite aus viel untersucht worden ist. Das große Interesse an der Harmonischenerzeugung ist von der möglichen Verwendung als kurzwellige Lichtquelle verursacht. In der Tat ist es möglich, durch die Harmonischenemission kohärente XUV Strahlung zu erzeugen. Vor kurzem sind Harmonische von 67Å Wellenlänge beobachtet worden [20]. Wie schon in Kapitel 2 vorgestellt, zeigen die Harmonischenspektren von einem einzelnen Atom in einem monochromatischen Laserfeld einige charakteristische Eigenschaften: (i) nur ungerade, linear polarisierte Harmonische werden erzeugt, (ii) das Spektrum zeigt ein Plateau, (iii) das Plateau dehnt sich bis zu einem Cut-off aus, der in der Nähe von $E_{ip} + 3.17U_p$ liegt. E_{ip} ist die Ionisierungsenergie des Atoms und U_p ist die ponderomotorische Energie. Die Anwesenheit von nur ungeraden Harmonischen basiert auf Symmetriegründen (im nächsten Abschnitt wird eine eingehendere Erklärung gegeben), und die Lage des Cut-offs kann mit der sogenannten „Simple Man’s“ Theorie erklärt werden, wie bereits in Kapitel 1 gezeigt. Die Wechselwirkung von einem einzelnen Atom mit zwei zirkular polarisierten La-

sen der Frequenzen ω und 2ω wurde kürzlich untersucht [21]. Es wurde gefunden, daß die Harmonischenordnung $3n$ verboten ist.

Die Harmonischenerzeugung in komplexeren Systemen als das einzelne Atom ist ein aktuelles Forschungsgebiet. Ein Modell für die Harmonischenerzeugung von atomaren Clustern wurde vorgeschlagen [22], und auch Harmonische, die von Elektronen erzeugt werden, die sich im periodischen Potential eines Kristalls bewegen, wurden untersucht [23, 24].

In diesem Kapitel wollen wir hauptsächlich die Harmonischenerzeugung von ringförmigen Molekülen wie Benzol untersuchen. Diese Art von Molekülen zeigt eine Invarianz unter einer diskreten Drehung um die Achse, die durch das Zentrum des Moleküls geht und senkrecht auf der Molekülebene steht. In diesem Fall ist das Potential periodisch in der azimuthalen Richtung. Die Harmonischenerzeugung von ringförmigen Molekülen, die mit einem zirkular polarisierten Feld in Wechselwirkung stehen, zeigt viele unterschiedliche Eigenschaften im Vergleich zum Fall des einzelnen Atoms in einem linear polarisierten Laserfeld: (i) in dem gleichen Frequenzintervall werden weniger Harmonische ausgestrahlt, und aus je mehr Atomen das Molekül besteht, desto kleiner ist die Zahl der ausgestrahlten Harmonischen, (ii) gerade und ungeraden Harmonische sind in gleicher Weise möglich, (iii) die Harmonischen sind wechselweise links- und rechtszirkular polarisiert. Alle diese Eigenschaften machen das Thema sehr interessant und sind es wert, im Detail studiert zu werden.

3.2 Moleküle und Atome in Laserfeldern: Symmetrie des Hamilton-Operators

Die Symmetrie der Hamilton-Operatoren von Molekülen und Atomen soll diskutieren werden. Dafür berücksichtigt man nur ein einzelnes Elektron als aktiv. Diese Vereinfachung stört die Allgemeinheit unserer Diskussion nicht, weil die Symmetrieeigenschaften des Hamilton-Operators unabhängig von der Zahl der Elektronen sind [25]. Solange nicht ausdrücklich angeführt betrachten wir in diesem Abschnitt zirkular polarisierte Laserfelder. Der Hamilton-Operator H_{mo} eines ringförmigen

Moleküls in einem Laserfeld der Amplitude \mathcal{E} ist in Dipolnäherung, Längeneichung, zylindrischen Koordinaten und atomaren Einheiten

$$H_{mo} = -\frac{1}{2\rho} \frac{\partial}{\partial \rho} \left(\rho \frac{\partial}{\partial \rho} \right) - \frac{1}{2\rho^2} \frac{\partial^2}{\partial \varphi^2} - \frac{\partial^2}{\partial z^2} + V_{mo}(\rho, \varphi, z) + \frac{\mathcal{E}}{\sqrt{2}} \rho \cos(\varphi - \omega t), \quad (3.1)$$

wobei $V_{mo}(\rho, \varphi, z)$ ein Modellpotential eines ringförmigen Moleküls mit N Ionen ist. Dieses Potential ist invariant unter einer Drehung von $2\pi/N$. Der Hamilton-Operator ist hingegen invariant unter der sogenannten dynamischen Symmetrieoperation

$$\hat{P}_N = \left(\varphi \rightarrow \varphi + \frac{2\pi}{N}, t \rightarrow t + \frac{2\pi}{N\omega} \right). \quad (3.2)$$

Im Fall eines Atoms in einem Zweifarbenlaserfeld lautet der Hamilton-Operator H_{at}

$$\begin{aligned} H_{at} = & -\frac{1}{2\rho} \frac{\partial}{\partial \rho} \left(\rho \frac{\partial}{\partial \rho} \right) - \frac{1}{2\rho^2} \frac{\partial^2}{\partial \varphi^2} - \frac{\partial^2}{\partial z^2} + V_{at}(\rho, z) \\ & + \frac{\mathcal{E}_1}{\sqrt{2}} \rho \cos(\varphi - \omega t) + \frac{\mathcal{E}_2}{\sqrt{2}} \rho \cos(\varphi + \eta \omega t), \end{aligned} \quad (3.3)$$

wobei \mathcal{E}_1 und \mathcal{E}_2 die Amplituden der zwei Laserfelder sind. Der zweite Laser hat eine Frequenz, die η mal die Frequenz des ersten Lasers ist, mit η als einer ganzen Zahl. Die Polarisation des zweiten Lasers ist der des ersten entgegengesetzt. Im folgenden benutzen wir dafür die Notation $\{\omega, -\eta\omega\}$. Die besondere diskrete Symmetrie wird von dem zweiten Laser erzeugt. In der Tat sind alle Terme von (3.3) außer dem letzten invariant unter der kontinuierlichen dynamischen Transformation

$$\hat{P}_\infty = \left(\varphi \rightarrow \varphi + \theta, t \rightarrow t + \frac{\theta}{\omega} \right), \quad (3.4)$$

wobei θ einen beliebigen Wert hat. Wenn es keinen anderen Term gibt, werden keine Harmonischen erzeugt. Wenn man fordert, daß auch der letzte Term invariant unter der Transformation (3.4) ist, erhält man

$$\theta + \eta \theta = (\eta + 1)\theta = 2\pi k \implies \theta = \frac{2\pi k}{\eta + 1}. \quad (3.5)$$

Daher ist der Hamilton-Operator H_{at} invariant unter der dynamischen Drehung

$$\hat{P}_{\eta+1} = \left(\varphi \rightarrow \varphi + \frac{2\pi}{\eta+1}, t \rightarrow t + \frac{2\pi}{(\eta+1)\omega} \right). \quad (3.6)$$

Dies ist gleich dem Fall des ringförmigen Moleküls mit $N = 1 + \eta$, und es folgt, daß die Hamilton-Operatoren (3.1) und (3.3) bezüglich Symmetrie betreffend äquivalent sind.

Wenn ein Hamilton-Operator periodisch in der Zeit mit einer Periode τ ist, d.h. $H(t + \tau) = H(t)$, hat die zeitabhängige Schrödinger-Gleichung

$$\left[H(t) - i \frac{\partial}{\partial t} \right] \Psi(\vec{r}, t) = 0 \quad (3.7)$$

als Lösung eine Funktion $\Psi_\xi(\vec{r}, t)$, die die Form

$$\Psi_\xi(\vec{r}, t) = e^{-i\xi t} \Phi(\vec{r}, t), \quad \Phi(\vec{r}, t + \tau) = \Phi(\vec{r}, t) \quad (3.8)$$

hat (Floquet-Theorem). Damit folgt

$$\left[H(t) - i \frac{\partial}{\partial t} \right] \Phi(\vec{r}, t) = \xi \Phi(\vec{r}, t). \quad (3.9)$$

ξ ist die Quasienergie und $\Phi(\vec{r}, t)$ eine quadratintegrale periodische Funktion. Wir nennen die Funktionen $\Phi(\vec{r}, t)$ „Floquet-Zustände“. Da die Menge aller Funktionen, die in einem bestimmten Intervall quadratintegabel sind und die eine endliche Norm über eine Periode haben, einen zusammengesetzten Hilbertraum bildet, können wir für die Floquet-Zustände den Formalismus des erweiterten Hilbertraumes [26] benutzen.

3.3 Gruppentheorie

Der ungestörte molekulare Hamilton-Operator

$$H_{mo}^0 = -\frac{1}{2\rho} \frac{\partial}{\partial \rho} \left(\rho \frac{\partial}{\partial \rho} \right) - \frac{1}{2\rho^2} \frac{\partial^2}{\partial \varphi^2} - \frac{\partial^2}{\partial z^2} + V_{mo}(\rho, \varphi, z) \quad (3.10)$$

hat die Symmetriegruppe \mathcal{D}_{Nh} [27, 28]. Wenn das Molekül mit einem Laserfeld wechselwirkt, das keine Pulsform hat, sondern unendlich ist, kann der gesamte Hamilton-Operator H_{mo} (3.1) als $H_{mo} = H_{mo}^0 + W(t)$ mit $W(t) \propto \rho \cos(\varphi - \omega t)$ geschrieben werden. $W(t)$ hat die Symmetrie \mathcal{G}_∞ , d.h. eine Erweiterung der sogenannten zyklischen, dynamischen Symmetriegruppe \mathcal{G}_L , die von $\mathcal{G}_L \equiv \{\hat{P}_L, \hat{P}_L^2, \dots, \hat{P}_L^{L-1}, \hat{P}_L^L = I\}$, wobei L die Ordnung der Gruppe ist, definiert wird. \hat{P}_L ist der schon eingeführte Operator

$$\hat{P}_L = \left(\varphi \rightarrow \varphi + \frac{2\pi}{L}, t \rightarrow t + \frac{2\pi}{L\omega} \right). \quad (3.11)$$

Wenn man \mathcal{D}_{Nh} und \mathcal{G}_∞ vereinigt, erhält man \mathcal{G}_N als Symmetriegruppe des Hamilton-Operators H_{mo} . N ist die Zahl der Ionen in dem Molekül, die die diskrete Rotationssymmetrie bestimmt. Da \mathcal{G}_N eine zyklische Gruppe ist, ist sie auch Abelsch und daher hat sie die folgenden Eigenschaften: (i) jedes Element bildet eine Klasse, d.h., es gibt N irreduzible Darstellungen, (ii) jede irreduzible Darstellung ist eindimensional, d.h. eine Menge komplexer Zahlen. Die Gruppe \mathcal{G}_N ist isomorph zu der bekannten Gruppe \mathcal{C}_N und daher haben beide dieselbe Charakterentafel. Es ist der Mühe wert, die Änderung der Symmetrie des Hamilton-Operators bei Anwesenheit des Laserfeldes aus physikalischer Sicht zu untersuchen: die Gruppe \mathcal{D}_{Nh} enthält $4N$ Elemente, d.h. N Drehungen um eine Achse N -ter Ordnung, N Drehungen um N Achsen zweiter Ordnung, N Spiegelungen σ_v an den senkrechten Ebenen und N Drehspiegelungen $C_N^k \sigma_h$ [27, 28]. Aus Gleichung (3.1) folgt, daß nur die Drehungen um die senkrechte Achse N -ter Ordnung noch eine Symmetrietransformation des vollen Hamilton-Operators ist. In der Tat würden die Spiegelungen an den senkrechten Ebenen und die Drehungen um die waagerechten Achsen eine ortsabhängige Zeittransformation erfordern. Die Spiegelungen σ_h an den waagerechten Ebenen würden die Polarisierung des Laserfeldes ändern. Daher bleiben von den möglichen $4N$ Symmetrietransformationen des Operators H_{mo}^0 nur N Transformationen, nämlich die Drehungen um die Achse N -ter Ordnung. Für eine solche Gruppe \mathcal{C}_N ist die Form ihrer Darstellungen N -abhängig: Wenn N ungerade ist, gibt es eine reelle und $N - 1$ komplexe Darstellungen, wenn jedoch N gerade ist, gibt es zwei reelle und $N - 2$ komplexe Darstellungen. Die Hälfte der komplexen Darstellungen sind die komplex

konjugierten der anderen Hälfte. Wir nennen die N irreduziblen Darstellungen R_ℓ , mit ℓ als Index zwischen 0 und $N-1$. Die Erzeugende der ℓ -ten Darstellung ist durch $e^{i2\pi\ell/N}$ gegeben; daher folgt, daß der $(m+1)$ -te Eintrag der ℓ -ten Darstellung $e^{i2\pi\ell m/N}$ ist. Da die Darstellungen eindimensional sind, ist das Produkt zweier Darstellungen R_α und R_β die irreduzible Darstellung $R_{\alpha+\beta}$. Wenn $\alpha + \beta \geq N$, ist $R_{\alpha+\beta}$ äquivalent zur $R_{\alpha+\beta-N}$. Es folgt, daß jeder Eintrag in der Produkttabelle eine irreduzible Darstellung ist. Aus dieser Diskussion kann man die folgenden Rückschlüsse ziehen: (i) aus der Definition der Erzeugenden ergibt sich, daß die komplex konjugierte Darstellung von R_ℓ $R_{N-\ell}$ ist, (ii) die Darstellung R_0 hat alle Charaktere gleich 1 (diese ist die bekannte “vollständig symmetrische irreduzible Darstellung”), (iii) wenn N gerade ist, ist $R_{N/2}$ die andere reelle Darstellung. Die Beschreibung des Benzol-Moleküls mit der Gruppentheorie wird später sehr nützlich sein, um die Harmonischenspektren im Detail zu verstehen. Ob ein Übergang zwischen zwei Zuständen im Laserfeld unterschiedlicher Symmetriedarstellung möglich ist oder nicht, kann aus dem Symmetrieprodukt des Anfangszustandes mit dem induzierenden Übergangsoperator und dem komplex konjugierten Endzustand abgeleitet werden. Wenn das Produkt zur vollständig symmetrischen irreduziblen Darstellung führt (in unserer Schreibweise $R_{end}^* \otimes R_{Op} \otimes R_{ini} = R_0$), ist der Übergang möglich.

3.4 Auswahlregeln: einzelner Floquet-Zustand

Wenn das System in einem einzelnen Floquet-Zustand ist, hat die Lösung der Gleichung (3.7) die folgende Form:

$$\Psi(\vec{r}, t) \equiv \Psi_\xi(\vec{r}, t) = e^{-i\xi t} \Phi(\vec{r}, t). \quad (3.12)$$

Wenn der Laserpuls genügend adiabatisch ist, ist die Berechnung des Harmonischenspektrums aus der Fourier-Transformation des Dipolerwartungswertes eine gute Näherung. Daher ist die Wahrscheinlichkeit, die n -te Harmonische bei einem

System in einem Zustand $\Psi_\xi(\vec{r}, t)$ zu messen,

$$\begin{aligned}
\chi(n) &\propto n^4 \left| \int e^{in\omega t} dt \int \Psi_\xi^*(\vec{r}, t) \rho e^{\mp i\varphi} \Psi_\xi(\vec{r}, t) d\vec{r} \right|^2 \\
&= n^4 \left| \iint \Psi_\xi^*(\vec{r}, t) \rho e^{i(n\omega t \mp \varphi)} \Psi_\xi(\vec{r}, t) d\vec{r} dt \right|^2 \\
&= n^4 \left| \iint \Phi^*(\vec{r}, t) \rho e^{i(n\omega t \mp \varphi)} \Phi(\vec{r}, t) d\vec{r} dt \right|^2 \\
&= n^4 \left| \langle \langle \Phi(\vec{r}, t) | \hat{\mu}_\mp e^{-in\omega t} | \Phi(\vec{r}, t) \rangle \rangle \right|^2,
\end{aligned} \tag{3.13}$$

wobei $\hat{\mu}_\mp = \rho e^{i(n\omega t \mp \varphi)}$ der Dipoloperator ist und die doppelte Klammer $\langle \langle \dots \rangle \rangle$ Integration über Raum und Zeit bedeutet. Wenn wir $[H_{at}(t) - i\frac{\partial}{\partial t}] \equiv \mathcal{H}_{at}(t)$ definieren, folgt im Fall eines Atoms in einem linear polarisierten Feld (in Dipolnäherung), daß der Hamilton-Operator $H_{at}(t)$ invariant ist unter dem dynamischen Symmetrieoperator zweiter Ordnung

$$\mathcal{P}_2 = (\vec{r} \rightarrow -\vec{r}, t \rightarrow t + \pi/\omega). \tag{3.14}$$

Daher ist der Zustand $|\Phi\rangle$ (bei nicht-Entartung) gleichzeitig Eigenfunktion von $H_{at}(t)$ und des dynamischen Symmetrieoperators zweiter Ordnung mit Eigenwerten ± 1 . Die n -te Harmonische wird daher nur ausgestrahlt, wenn

$$\langle \langle \Phi | \hat{\mu} e^{-in\omega t} | \Phi \rangle \rangle = \langle \langle \mathcal{P}_2 \Phi | \mathcal{P}_2 \hat{\mu} e^{-in\omega t} \mathcal{P}_2^{-1} | \mathcal{P}_2 \Phi \rangle \rangle \neq 0, \tag{3.15}$$

und dies führt zu

$$\hat{\mu}(\vec{r}) e^{-in\omega t} = \hat{\mu}(-\vec{r}) e^{-in\omega(t+\pi/\omega)}, \tag{3.16}$$

was nur mit ungeradem n erfüllt wird.

Der Hamilton-Operator $\mathcal{H}_{mo}(t) \equiv [H_{mo}(t) - i\frac{\partial}{\partial t}]$ ist invariant unter einer Drehung um eine N -zählige Achse,

$$\mathcal{P}_N = \left(\varphi \rightarrow \varphi + \frac{2\pi}{N}, t \rightarrow t + \frac{2\pi}{N\omega} \right), \tag{3.17}$$

wobei φ die Winkelkoordinate um die Symmetrieachse ist. Mit einer ähnlichen

Algebra wie oben können wir

$$e^{\pm i(\varphi + \frac{2\pi}{N})} e^{-in\omega(t + \frac{2\pi}{N\omega})} = e^{\pm i\varphi} e^{-in\omega t} \implies e^{-i\frac{2\pi(n\pm 1)}{N}} = 1 \quad (3.18)$$

erhalten. Aus dieser Gleichung folgt

$$n = kN \pm 1, \quad k \in \mathcal{N}. \quad (3.19)$$

Das bedeutet, daß mit höherer Symmetrieordnung die Zahl der ausgestrahlten Harmonischen in einem festen Frequenzintervall geringer ist. In dem Grenzfall einer kontinuierlichen Symmetrie C_∞ erzeugt ein zirkular polarisiertes Feld keine Harmonische. Die zwei Harmonischen in jedem Paar haben entgegengesetzte Polarisation. Die Harmonischen $kN + 1$ haben die gleiche Polarisation wie die einfallende Laserstrahlung, die Harmonische $kN - 1$ die entgegengesetzte.

3.4.1 Alternative Herleitungen

Die Auswahlregeln für den Fall eines Floquet-Zustandes können auch aus einem Bezugssystemwechsel hergeleitet werden. Wenn man auf das rotierende Bezugssystem wechselt, in dem der elektrische Feldvektor stationär ist, „sieht“ das Elektron im Fall des Ringmoleküls ein rotierendes Ionenpotential in einem statischen Feld. Das rotierende Ionenpotential erzeugt ein Feld mit der Grundfrequenz $N\omega$. Im Fall des Atoms im Zweifarbenlaserfeld entgegengesetzter Polarisation „sieht“ das Elektron das statische Feld des ersten Lasers und das schwingende Feld des zweiten Lasers der Frequenz $N\omega$ mit $N = \eta + 1$. In diesem Bezugssystem hat der Dipol nur Fourier-Komponenten $kN\omega$ mit $k \in \mathcal{N}$. Wenn man zurück zum Laborsystem wechselt, werden die Fourier-Komponenten um $\pm|\omega|$ verschoben. Daraus folgt die Auswahlregel (3.19).

Im Fall des Moleküls ist es möglich, dieselbe Auswahlregel auch durch eine Betrachtung der Grundzustandssymmetrie herzuleiten. In der Tat ist der Grundzustand von der Gestalt $\Psi_0 = \sum_{k=0}^{\infty} \sum_{l \geq kN} a_{k,l} Y_l^{kN}$, da er die passende azimuthale Symmetrie haben muß. Angenommen die Polarisation des Lasers ist σ^+ . Wenn die ausgestrahl-

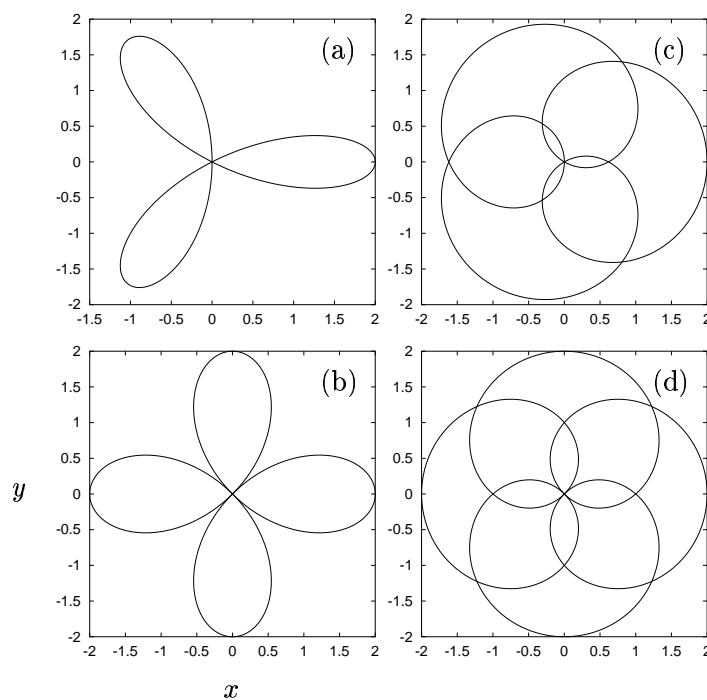


Abbildung 3.1: Bahnen eines klassischen Punktteilchens in Zweifarbenlaserfeldern. Die Frequenzen der Laser sind: (a) $\{\omega, -2\omega\}$, (b) $\{\omega, -3\omega\}$, (c) $\{\omega, 4\omega\}$ und (d) $\{\omega, 5\omega\}$. Man bemerkt, daß in den Fällen (a) und (c) bzw. (b) und (d) das Teilchen gleich oft zum Ursprung zurückkehrt. In der Tat gelten in diesen Fällen gleiche Auswahlregeln [21].

te Harmonische ebenfalls Polarisation σ^+ hat, muß das Molekül $kN + 1$ Photonen absorbieren, um die Symmetrie zu erhalten. Wenn hingegen die ausgestrahlte Harmonische Polarisation σ^- hat, ist die Zahl der absorbierten Photonen $kN + 1$. Daher hat die Harmonische dieselbe Polarisation wie der Laserpuls.

Für das Atom ist eine ähnliche Herleitung durch die Drehimpulserhaltung möglich. Ist das Elektron anfangs in einem s -Zustand und der erste Laser hat die Frequenz ω und Polarisation σ^+ , während der zweite die Frequenz $\eta\omega$ und Polarisation σ^- hat, dann muß, wenn eine Harmonische mit Polarisation σ^+ ausgestrahlt wird, die Summe des Drehimpulses der absorbierten Photonen gleich 1 sein. Wenn p Photonen aus dem ersten Laser absorbiert werden, müssen $p - 1$ des anderen Lasers absorbiert werden. Daher ist die totale absorbierte Energie $p\omega + (p - 1)\eta\omega = \omega[p(1 + \eta) - \eta] = \omega[(p - 1)(1 + \eta) + 1]$. Da p beliebig sein kann, erhält man mit $k = p + 1$ und $N = \eta + 1$, sodaß die $(kN + 1)$ -ten Harmonischen ausgestrahlt werden. Dieses Argument kann auch für die Polarisation σ^- angewendet werden und führt analog zu $kN - 1$. Wenn die Polarisierungen der zwei Laser gleich sind, kann man dieselbe Herleitung durchführen, und man findet dieselben Auswahlregeln, aber mit $N = \eta - 1$. Befindet sich das System nicht in einem einzigen Floquet-Zustand, führen solch einfache Überlegungen leider nicht mehr zum Ziel.

Die Auswahlregeln für den Fall $\{\omega, -\eta\omega\}$ sind äquivalent zu denen des Falles $\{\omega, (\eta + 2)\omega\}$. Es ist interessant zu bemerken, daß diese Äquivalenz auch aus den Bahnen eines klassischen Punktteilchen im Laserfeld erhalten werden kann. Es kommt nämlich darauf an, wie oft in einem Laserzyklus $2\pi/\omega$ das Teilchen zum Startort, wo das Ion angenommen wird, zurückkehrt [21]. Dies ist in Abbildung 3.1 illustriert.

3.5 Auswahlregeln: mehrere Floquet-Zustände

Für ein System, dessen Hamilton-Operator periodisch ist in der Zeit und das nicht in einem einzelnen Floquet-Zustand ist, kann man die Wellenfunktion $\Psi(\vec{r}, t)$ in einer Reihe von Floquet-Zuständen entwickeln,

$$\Psi(\vec{r}, t) = \sum_i \beta_i e^{-i\xi_i t} \Phi_i(\vec{r}, t), \quad (3.20)$$

wobei ξ_i die Quasienergie des Zustandes Φ_i ist. Die Quasienergie schreibt man üblicherweise als $\xi_i = \Delta_i - i\Gamma_i$. Δ_i ist die Energie im Feld und Γ_i ist die Ionisationsrate. Im Folgenden wird der imaginäre Teil von ξ_i vernachlässigt, denn er führt lediglich zu einer endlichen Linienbreite der Harmonischen. Gleichung (3.13) wird zu

$$\begin{aligned} \chi(n) \propto n^4 & \left| \sum_i |\beta_i|^2 \iint \Phi_i \rho e^{i(n\omega t \mp \varphi)} \Phi_i d\vec{r} dt \right. \\ & + \sum_{i \geq j} \beta_i^* \beta_j \iint \Phi_i e^{+i\Delta_i t} \rho e^{i(n\omega t \mp \varphi)} e^{-i\Delta_j t} \Phi_j d\vec{r} dt \\ & \left. + \sum_{i \geq j} \beta_j^* \beta_i \iint \Phi_j e^{i\Delta_j t} \rho e^{i(n\omega t \mp \varphi)} e^{-i\Delta_i t} \Phi_i d\vec{r} dt \right|^2. \end{aligned} \quad (3.21)$$

Führt man $\Delta_i^j \equiv \Delta_j - \Delta_i$ und den Operator

$$\hat{G}_{\mp}^{(i,j)} \equiv \rho e^{i((n\omega - \Delta_i^j)t \mp \varphi)}$$

ein, kann man die Entwicklung (3.21) mit dem Formalismus des erweiterten Hilbertraumes als

$$\begin{aligned} \chi(n) \propto n^4 & \left| \sum_i |\beta_i|^2 \langle \Phi_i | \hat{G}_{\mp}^{(i,i)} | \Phi_i \rangle + \sum_{i \geq j} \beta_i^* \beta_j \langle \Phi_i | \hat{G}_{\mp}^{(i,j)} | \Phi_j \rangle \right. \\ & \left. + \sum_{i \geq j} \beta_j^* \beta_i \langle \Phi_j | \hat{G}_{\mp}^{(j,i)} | \Phi_i \rangle \right|^2 \end{aligned} \quad (3.22)$$

schreiben. Man kann $\hat{G}_{\mp}^{(i,j)}$ als den einen Übergang erzeugenden Operator betrachten. Die Anfangszustände und Endzustände können gleich oder verschieden sein. Wenn ein Übergang passiert, wird eine Harmonische ausgestrahlt. Wenn das System in einem reinen Floquet-Zustand ist, besteht die Entwicklung (3.22) aus nur einem Summanden. Wenn das System im Floquet-Grundzustand ist, ist $\chi(n)$ proportional zur Fourier-Transformation des auf den Floquet-Grundzustand bezogenen

Dipolerwartungswertes

$$\chi(n) \propto n^4 \left| |\beta_0|^2 \langle \Phi_0 | \hat{G}_{\mp}^{(i,i)} | \Phi_0 \rangle \right|^2. \quad (3.23)$$

Die Struktur des Harmonischenspektrums kann nun hergeleitet werden. Da $\hat{P}_N^{-1} \hat{P}_N = 1$, gilt

$$\langle \Phi_i | \hat{G}_{\mp}^{(i,j)} | \Phi_j \rangle = \langle \hat{P}_N \Phi_i | \hat{P}_N \hat{G}_{\mp}^{(i,j)} \hat{P}_N^{-1} | \hat{P}_N \Phi_j \rangle, \quad (3.24)$$

und wenn man den Operator $\hat{G}_{\mp}^{(i,j)}$ in expliziter Form schreibt, erhält man

$$\begin{aligned} \hat{P}_N \hat{G}_{\mp}^{(i,j)} \hat{P}_N^{-1} &= \hat{P}_N \rho_0 e^{i((n\omega - \Delta_i^j)t \mp \varphi)} \hat{P}_N^{-1} \\ &= \rho_0 e^{i((n\omega - \Delta_i^j)t \mp \varphi)} \left[e^{i \frac{2\pi}{N} (n - \frac{\Delta_i^j}{\omega} \mp 1)} \right] = \hat{G}_{\mp}^{(i,j)} \left[e^{i \frac{2\pi}{N} (n - \frac{\Delta_i^j}{\omega} \mp 1)} \right]. \end{aligned} \quad (3.25)$$

Wenn man M mal den Operator anwendet, erhält man

$$[\hat{P}_N]^M \hat{G}_{\mp}^{(i,j)} [\hat{P}_N^{-1}]^M = \hat{G}_{\mp}^{(i,j)} \left[e^{i \frac{2\pi M}{N} (n - \frac{\Delta_i^j}{\omega} \mp 1)} \right]. \quad (3.26)$$

Gruppentheoretisch ist der Term zwischen den Klammern in (3.25) der Generator der entsprechenden irreduziblen Darstellung. Außerdem kann man aus der Gleichung (3.26) sehen, wie der Harmonischenerzeugungsoperator sich unter den dynamischen Drehungen verhält. Wenn die irreduziblen Darstellungen der Floquet-Zustände $\Phi_i(\vec{r}, t)$ und $\Phi_j(\vec{r}, t)$ gegeben sind, kann man herleiten, welcher Darstellung der Operator $\hat{G}_{\mp}^{(i,j)}$ entsprechen muß, um Gleichung (3.24) zu erfüllen. Mit unserer Schreibweise muß $R_i^* \otimes R_{op} \otimes R_j = R_0$ gelten, wobei R_{op} die irreduzible Darstellung des Operators $\hat{G}_{\mp}^{(i,j)}$ ist. Aus der Charakterentafel der Gruppe folgt, daß $\hat{P}_N \Phi_j(\vec{r}, t)$ gleich einer Phase mal $\Phi_j(\vec{r}, t)$ ist und ähnlich für $\Phi_i(\vec{r}, t)$. Auch $\hat{P}_N \hat{G}_{\mp}^{(i,j)} \hat{P}_N^{-1}$ erzeugt eine Phase. Um die Erzeugung einer Harmonischen zu erlauben, muß das Produkt dieser drei Phasen gleich der Einheit sein. Deshalb muß der Operator $\hat{G}_{\mp}^{(i,j)}$ der Darstellung $R_{\ell_i - \ell_j}$ entsprechen. Wenn man den Term zwischen den Klammern in der Gleichung (3.25) gleich dem Generator der Darstellung $R_{\ell_i - \ell_j}$ setzt, erhält man

die Forderung

$$e^{i\frac{2\pi}{N}(n-\frac{\Delta_i^j}{\omega} \mp 1)} = e^{i\frac{2\pi(\ell_i - \ell_j)}{N}} \implies \frac{2\pi}{N}(n - \frac{\Delta_i^j}{\omega} \mp 1) = \frac{2\pi(\ell_i - \ell_j)}{N} + 2\pi k. \quad (3.27)$$

Daraus folgt

$$\hat{G}_{\mp}^{(i,j)} \longrightarrow n = kN + \ell_j^i + \frac{\Delta_i^j}{\omega} \pm 1, \quad (3.28)$$

wobei $\ell_j^i = \ell_i - \ell_j$ ist [29]. Führt man das Symbol $\tilde{\ell}_i \equiv \ell_i - \frac{\Delta_i}{\omega}$ ein, d.h. den Symmetrieindex minus der Energie des Zustandes im Laserfeld in Frequenzeinheiten, kann man (3.28) als

$$\hat{G}_{\mp}^{(i,j)} \longrightarrow n = kN + \tilde{\ell}_j^i \pm 1 \quad (3.29)$$

schreiben, wobei $\tilde{\ell}_j^i = \tilde{\ell}_i - \tilde{\ell}_j$ ist.

Wenn n geändert wird, zwingt man den Operator $\hat{G}_{\mp}^{(i,j)}$, sich unter den dynamischen Symmetrientransformationen nach den verschiedenen Darstellungen R_{ℓ} zu verhalten. Für jedes $\tilde{\ell}$ werden einige Harmonische ausgestrahlt. Die Auswahlregeln für $\hat{G}_{\mp}^{(i,i)}$ mit $\ell_j^i = 0$ und $\Delta_i^j = 0$ spiegeln die in [25] diskutierten Fälle wider, denn Anfangs- und Endzustand sind gleich in diesem Fall, so daß der Operator $\hat{G}_{\mp}^{(i,i)}$ sich gemäß der völlig symmetrischen Darstellung verhält. Es soll betont werden, daß die $\hat{G}_{\mp}^{(i,i)}$ und $\hat{G}_{\mp}^{(j,i)}$ betreffenden Prozesse verschieden sind, weil Anfangs- und Endzustand vertauscht sind.

Wenn die Energiedifferenz der den irreduziblen Darstellungen R_{ℓ_i} und R_{ℓ_f} entsprechenden Zustände im Laserfeld gleich $\omega(\ell_i - \ell_f)$ ist, erhält man eine Art zufälliger Entartung: die Linien, die solchen Übergängen entsprechen, können von denen, die von Einzelzustandsprozessen erzeugt werden, nicht unterschieden werden. Der Operator $\hat{G}_{\mp}^{(i,j)}$ kann sich nach irgendeiner Darstellung transformieren. Daher sind alle Übergänge zwischen den Floquet-Zuständen im Prinzip möglich. Natürlich bedeutet dies nicht, daß alle Übergänge mit gleicher Wahrscheinlichkeit passieren. Beachtet man, daß der Grundzustand R_0 entspricht und die anderen R_{ℓ} höhere Zustände darstellen, hat man die folgenden Symmetrieeigenschaften für die wichtigsten Übergänge: (i) $R_0 \rightarrow R_0$: Symmetrie R_0 , (ii) $R_0 \rightarrow R_{\ell}$: Symmetrie R_{ℓ} , (iii) $R_{\ell} \rightarrow R_0$: Symmetrie $R_{\ell}^* \equiv R_{N-\ell} \equiv R_{-\ell}$, (iv) $R_{\ell} \rightarrow R_{\ell}$: Symmetrie R_0 .

Tabelle 3.1: Charakterentafel für die Gruppe \mathcal{D}_6 .

\mathcal{D}_6	E	C_2	$2C_3$	$2C_6$	$3C_2'$	$3C_2''$
A_1	1	1	1	1	1	1
A_2	1	1	1	1	-1	-1
B_1	1	-1	1	-1	1	-1
B_2	1	-1	1	-1	-1	1
E_2	2	2	-1	-1	0	0
E_1	2	-2	-1	1	0	0

Wenn die Frequenz ω des endlichen Laserpulses (oder eine ihrer Vielfachen) fast resonant mit einem Übergang ist, wird dieser Zustand einfacher zu erreichen sein. Daher sind Übergänge, die mit diesem Zustand verbunden sind, wahrscheinlicher als andere. Wenn die Frequenz des Laserfeldes fern von allen Resonanzen ist, dann gibt nur der Grundzustand, d.h. R_0 , einen bedeutenden Beitrag zur Harmonischen-erzeugung. Aufgrund der Tatsache, daß die Auswahlregeln den Term Δ_i enthalten, kann man aus dem Harmonischenspektrum das Energieintervall zwischen den “field-dressed” Zuständen ermitteln.

3.6 Benzolmolekül

Das Benzolmolekül hat eine Symmetrie \mathcal{D}_{6h} , aber wenn man nur Funktionen betrachtet, die alle gerade oder ungerade unter Spiegelungen an der Molekülebene sind, ist es ausreichend, nur die Symmetrietransformationen der Gruppe \mathcal{D}_6 zu berücksichtigen. Die Charakterentafel der Gruppe \mathcal{D}_6 wird in Tabelle 3.1 gezeigt. Wenn man die vier niedrigsten Zustände mit den irreduziblen Darstellungen der Gruppe \mathcal{D}_6 verbindet, erhält man: A_1 (Grundzustand), E_1 (erster angeregter, zweidimensional), E_2 (zweiter angeregter, zweidimensional), B_1 (dritter angeregter, eindimensional). Wie schon diskutiert wurde, gehört der Hamilton-Operator $H_{mo} = H_{mo}^0 + W(t)$ zur dynamischen Symmetriegruppe \mathcal{G}_6 , die isomorph zu \mathcal{C}_6 ist. Die Charakterentafel der Gruppen \mathcal{G}_6 und \mathcal{C}_6 wird in Tabelle 3.2 gezeigt. Für die Gruppe \mathcal{C}_6 benutzen wir die übliche Schreibweise, für \mathcal{G}_6 die oben vorgestellte. Wenn der Laser anwesend

Tabelle 3.2: Charakterentafel der Gruppe \mathcal{G}_6 und ihrer isomorphen Gruppe \mathcal{C}_6 .

\mathcal{G}_6	\mathcal{C}_6	E	C_6	C_3	C_2	C_3^2	C_6^5
R_0	A	1	1	1	1	1	1
R_3	B	1	-1	1	-1	1	-1
R_1	E_1^a	1	ω	ω^2	ω^3	ω^4	ω^5
R_5	E_1^b	1	ω^5	ω^4	ω^3	ω^2	ω
R_2	E_2^a	1	ω^2	ω^4	1	ω^2	ω^4
R_4	E_2^b	1	ω^4	ω^2	1	ω^4	ω^2

Tabelle 3.3: Produkttafel für die irreduziblen Darstellungen der Gruppe \mathcal{C}_6 .

\otimes	R_0	R_1	R_5	R_2	R_4	R_3
R_0	R_0	R_1	R_5	R_2	R_4	R_3
R_1	R_1	R_2	R_0	R_3	R_5	R_4
R_5	R_5	R_0	R_4	R_1	R_3	R_2
R_2	R_2	R_3	R_1	R_4	R_0	R_5
R_4	R_4	R_5	R_3	R_0	R_2	R_1
R_3	R_3	R_4	R_2	R_5	R_2	R_0

ist, sind die Entartungen der Darstellungen E_1 und E_2 aufgehoben. Wenn man z.B. die Darstellung E_1 des feldfreien Systems berücksichtigt, erhält man, daß mit einem unendlichen Puls die Darstellung reduzibel wird. Man hat $E_1 \rightarrow E_1^a + E_1^b = R_1 + R_5$. Dasselbe für E_2 , $E_2 \rightarrow E_2^a + E_2^b = R_2 + R_4$. Daher gehören die komplex konjugierten Darstellungen zu verschiedenen Energiezuständen. Dies liegt an der Nichtinvarianz des Hamilton-Operators unter Zeitinversion (ein ähnlicher Fall liegt vor, wenn ein Magnetfeld anwesend ist).

Das Molekül im Laserfeld wird durch die Darstellungen R_i (mit i zwischen 0 und 5) beschrieben. Dieses System ist stabil, d.h., es gibt keine Übergänge zwischen den „field-dressed“ Zuständen. Übergänge werden möglich, wenn „Störungen“ anwesend sind. Die Auswahlregeln können in diesem Fall aus Tabelle 3.3 erhalten werden. Wenn der Laserpuls eine endliche Dauer hat, kann man dies als eine Störung betrachten. Ein Übergang ist nur möglich, wenn der induzierende Operator die angemessene Symmetrie hat.

3.7 Numerisches Modell

Um den numerischen Aufwand angemessen zu halten, wurden die Simulationen auf ein zweidimensionales Modell beschränkt [30]. In diesem Modell liegen Molekül und elektrischer Feldvektor in einer Ebene. Wir untersuchen den Fall eines einzelnen Elektrons in einem ringförmigen Potential von N Ionen. Verschiedene „soft-core“ Potentialsorten können dafür verwendet werden. Das Potential, das in den hier vorgestellten Simulationen benutzt wurde, ist

$$V(\rho, \varphi) = -\frac{A}{\sqrt{(\rho - r_0)^2 + \beta}}(\alpha \cos(N \varphi) + 2 - \alpha), \quad (3.30)$$

wobei r_0 der Radius des Moleküls ist, und ρ und φ Zylinderkoordinaten sind. β ist ein Parameter, der die Glattheit und die Tiefe des Potentials regelt. Er bestimmt die Weite des Grundzustandes entlang des Ringes. α reguliert die lokalen Maxima des Potentials, wobei die Minima konstant bleiben (der Parameter α ist eingeführt worden, um die Anwesenheit von Punkten zu vermeiden, wo für endliches ρ $V = 0$ ist). A ist die Stärke des Potentials. Für die hier vorgestellten Simulationen wurde $\alpha = 0.99$ und $\beta = 0.38$ gewählt. Wenn die Werte von α und β , die zu vernünftigen Eigenschaften des Modells führen, ausgewählt und festgelegt worden sind, können wir A verändern, um die Ionisationsenergie des Moleküls zu regeln. Das Potential hat N Oszillationen in der azimuthalen Richtung, jedes Minimum verkörpert die Lage eines Ions. Das Potential strebt nach Null, wenn $\rho \rightarrow \infty$. Es wurde getestet, daß die Harmonischenerzeugung von den Einzelheiten des Potentials nur sehr schwach abhängig ist. Sie ist jedoch stark abhängig von dessen Geometrie und Symmetrien. Es ist von Vorteil, ein Modellpotential zu benutzen, das, während es die genaue Symmetrie erhält, numerisch optimiert werden kann, d.h. ein Modell zu suchen, das mit so wenig Gitterpunkten wie möglich auskommt. Um die Zahl der Gitterpunkte zu minimieren und um keine physikalische Symmetrie zu brechen, wurde ein polares Gitter verwendet. Die Zahl der Gitterpunkte in azimuthaler Richtung war ein Vielfaches von N . Für $N = 6$, wie in Benzol hat das Potential eine Symmetrie C_6 bzgl. der orthogonalen Achse.

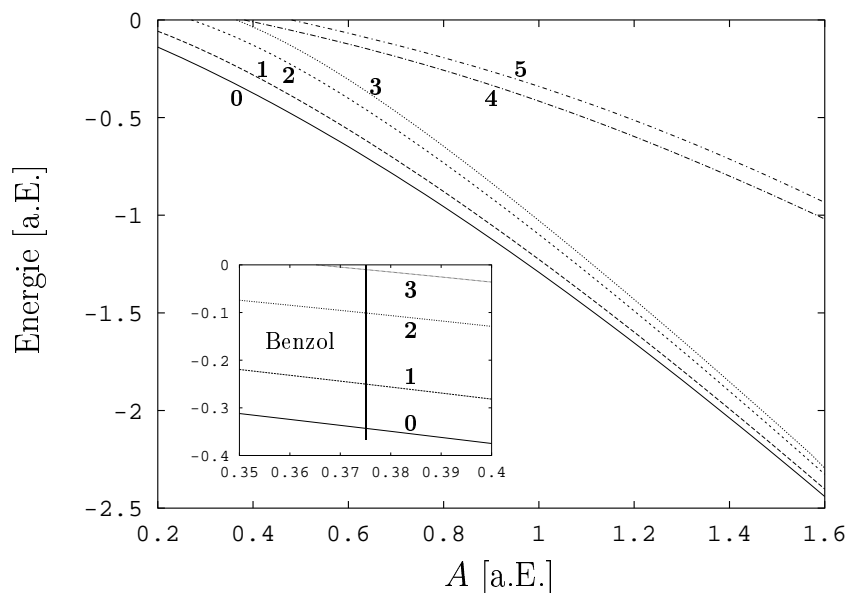


Abbildung 3.2: Energieverhalten der ersten sechs Zustände in Abhängigkeit von A .

Für ein gutes Verständnis des Harmonischenspektrums ist es wichtig, das Niveauschema im Detail zu studieren. Um das Modell zu charakterisieren, wurden für verschiedene Potentialstärken A in dem Intervall zwischen 0.2 und 1.6 die Energien der ersten sechs Zustände berechnet. In diesem Abschnitt nimmt die Energie des Molekülgrundzustandes von -0.14 auf -2.44 ab. Der Grundzustand, der dritte und vierte angeregte Zustand sind nicht entartet, die anderen sind zweifach entartet. In der Abbildung 3.2 wird das Energieverhalten gezeigt. Für niedrige Werte von A gehören einige von den Zuständen zum Kontinuum. Die Vergrößerung zeigt die Region um $A = 0.375$, wo vier Zustände gebunden sind. Für höhere A sind die Zustände in zwei Äste aufgespalten und eine Lücke wird sichtbar.

Konturliniendarstellungen der zu den sechs Zuständen gehörenden Wahrscheinlichkeitsdichte werden für $A = 0.80$ in Abbildung 3.3 gezeigt. Die Form und die Symmetrien der Zustände sind nicht A -abhängig, aber die räumliche Ausdehnung. Für niedrige Werte von A ist die Wahrscheinlichkeitsdichte selbstverständlich schwächer gebunden als für höhere Werte. Dies ist besonders deutlich für die höheren Zustände. Die sechs Zustände werden im Folgenden mit $0, 1_a, 1_b, 2_a, 2_b, 3, 4, 5_a, 5_b$ bezeich-

net. Die Indizes werden benutzt, um die entarteten Zustände zu unterscheiden. Die nichtentarteten Zustände **0**, **3** und **4** haben eine C_6 Symmetrie. Der erste Ast in

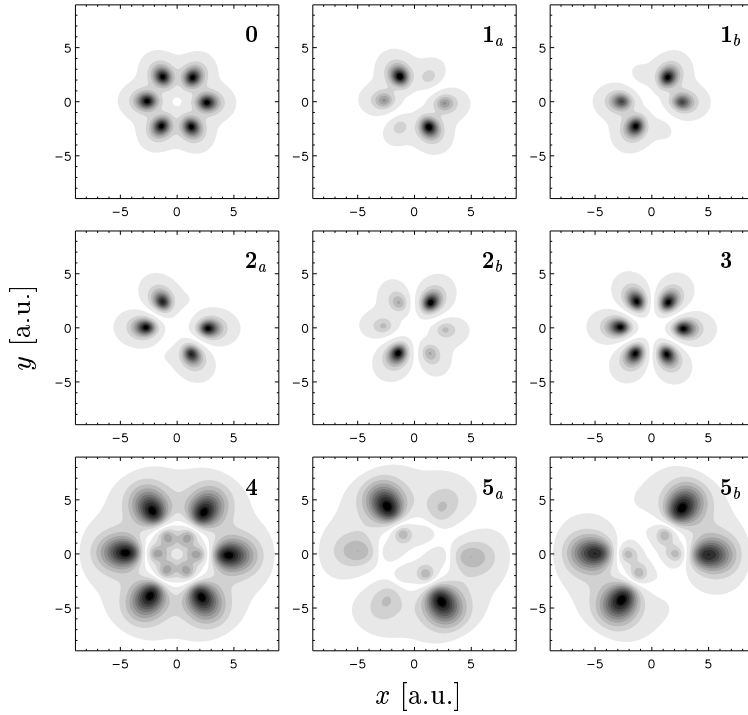


Abbildung 3.3: Konturliniedarstellung der ersten sechs Zustände des Modellbenzols. Für jeden entarteten Zustand werden zwei linear unabhängige Zustände gezeigt. Die nichtentarteten Zustände haben eine volle C_6 Symmetrie.

Abbildung 3.2, der die ersten vier Zuständen **0** – **3** enthält, nimmt für zunehmendes A rasch ab. Der zweite Ast, der die höheren Zustände **4** – **5** enthält, nimmt viel langsamer ab und liegt für $A < 0.4$ im Kontinuum. Daraus resultiert, daß für zunehmendes A der Abstand zwischen den zwei Ästen größer wird. Um die Ionisierungsenergie (-0.34 a.u.) des realen Benzols zu bekommen, muß man $A = 0.375$ wählen (siehe Ausschnitt). Das Niveauschema unseres einfachen Modells stellt das Molekülarorbitalschema des realen Benzols überraschend gut dar. Die Zustände **4** und **5** liegen im Kontinuum, und nur die vier Zustände **0** – **3** sind gebunden und haben die richtige Entartung [31].

Eine Größe, die in der Harmonischenerzeugung eine wichtige Rolle spielt, ist der

Abstand Ω zwischen dem Grundzustand und dem ersten angeregten Zustand. Für zunehmendes A , d.h. eine abnehmende Energie des Grundzustandes, nimmt Ω ab.

3.8 Ergebnisse im nichtresonanten Fall

Hier diskutieren wir die Ergebnisse, die mit einer Frequenz des Laserpulses erhalten wurden, die fern von Resonanzen zwischen Grundzustand und angeregten Zuständen ist [30]. Die Untersuchungen sind auf die Struktur des Harmonischenspektrums für verschiedene Werte der Ionisierungsenergie konzentriert. Im allgemeinen zeigen die Ergebnisse, daß zusammen mit den Harmonischen, die man aus den Einzelzustandsauswahlregeln $n = kN \pm 1$ [25] erwartet, andere Linien auftreten. Man beobachtet auch, daß für hohe Werte von A der Abstand zwischen den zwei Ästen in Abbildung 3.2 eine wichtige Rolle spielt. Für jedes A sind verschiedene Simulationen mit Pulsen, die dieselbe Frequenz, aber verschiedene Intensitäten hatten, durchgeführt worden. Im Allgemeinen wurde ein Sinusquadratpuls von 30 Zyklen und Frequenz $\omega = 0.0942$ benutzt. Um ein besseres Verständnis der nichterwarteten Linien zu erhalten, ist es nützlich, als erstes den Bereich niedriger Intensitäten zu untersuchen.

3.8.1 Niedrige Felder

Wenn die Intensität des Laserfeldes nicht hoch genug ist, um Harmonische zu erzeugen, zeigt die Fourier-Transformation des Dipols nur die Grundfrequenz. Es ist klar, daß die Feldstärke, die nötig ist, um effizient Harmonische zu erzeugen, von der Ionisierungsenergie abhängt. In Abbildung 3.4 sind zwei Dipolspektren für verschiedene Werte von A gezeigt. Das Spektrum in Abbildung 3.4a wurde mit einer Amplitude $\hat{\mathcal{E}} = 0.005$ und $A = 1.6$ erhalten. In diesem Fall sind mit Ausnahme der Grundfrequenz und der fünften Harmonischen andere vier Linien anwesend; zwei Linien sind bei 14.1ω beziehungsweise bei 16.1ω lokalisiert. Wir nennen sie Λ_a und Λ_b . Diese zwei Linien entsprechen zwei Resonanzen zwischen den Zuständen $\mathbf{0} \rightarrow \mathbf{5}$ und $\mathbf{3} \rightarrow \mathbf{4}$ und sind daher rotverschoben für abnehmendes A , was in Abbildung 3.4b ($A = 1.4$) bestätigt wird. In dieser Abbildung ist die fünfte Harmonische stärker,

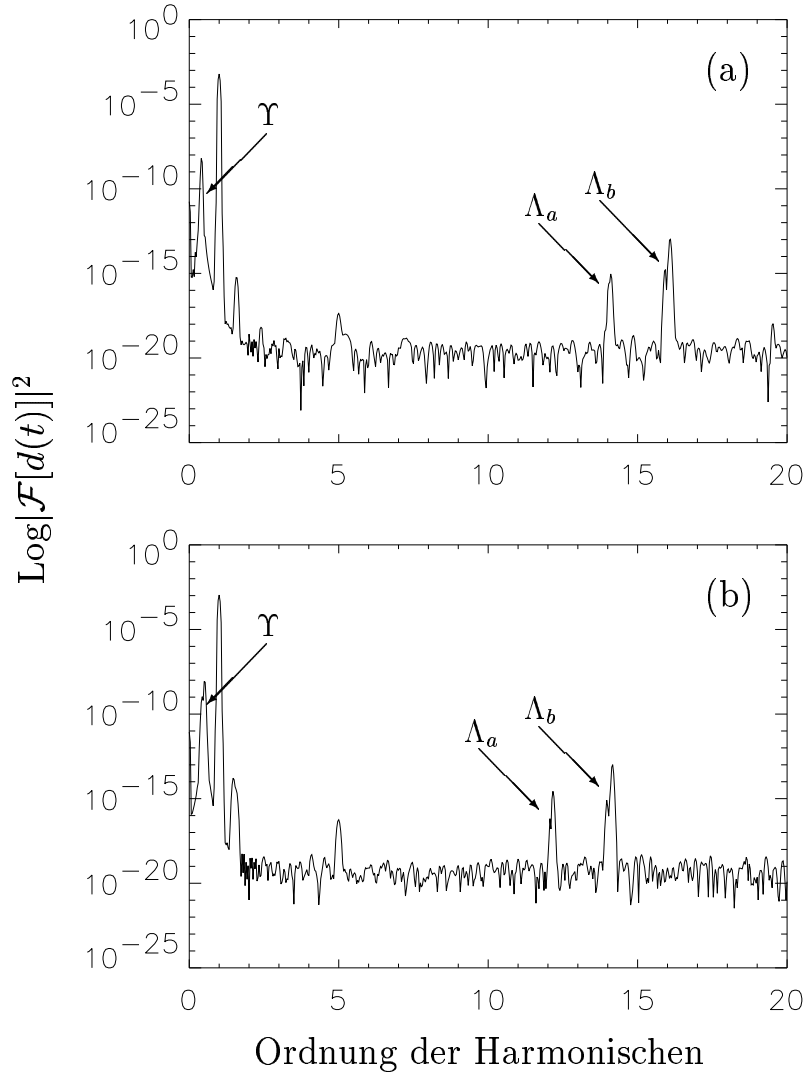


Abbildung 3.4: Spektren im Niedrigfeldbereich. In (a) $A = 1.6$ und $\hat{\mathcal{E}} = 0.005$, in (b) $A = 1.4$ und $\hat{\mathcal{E}} = 0.005$. Die Linien Λ_a , Λ_b und Υ sind in beiden Abbildungen anwesend. Wenn A zunimmt, sind die Linien Λ_a und Λ_b rot-verschoben.

weil effiziente Harmonischenerzeugung schwächere Felder erfordert, wenn die Ionisierungsenergie niedriger ist. Eine subharmonische Linie bei Ω , entsprechend einem Übergang zwischen dem Grundzustand und dem ersten angeregten Zustand, ist in beiden Fällen anwesend. Diese Linie wird im folgenden Υ genannt. Eine andere Linie ist bei $2\omega - \Omega$. Man bemerkt, daß Λ_a und Λ_b im Vergleich zu den Positionen, die man von dem ungestörten Niveauschema erwartet, blauverschoben sind. Diese Verschiebung kann mit dem dynamischen Stark-Effekt erklärt werden. Der Grundzustand bleibt fast unberührt, und höhere Zustände verschieben sich stärker. Daher nimmt mit zunehmender Laserintensität der Abstand zwischen den zwei Ästen im Laserfeld zu. Dies führt zu einer Blauverschiebung von Λ_a und Λ_b . Die drei Linien Λ_a , Λ_b und Υ sind die ersten Linien, die im Bereich niedriger Intensitäten sichtbar werden.

3.8.2 Hohe Felder

Das Harmonischenspektrum ändert sich mit zunehmender Laserintensität. In der Abbildung 3.5 sind die Harmonischenspektren für vier verschiedene Feldamplituden und $A = 1.6$ gezeigt. In der Abbildung 3.5a ist $\hat{\mathcal{E}} = 0.02$, und das Spektrum ist auf den ersten Blick ähnlich dem in Abbildung 3.4a: Λ_a und Λ_b sind beide anwesend, und auch die erste erwartete Harmonische, d.h. die fünfte, ist zu sehen. Wenn das Feld auf $\hat{\mathcal{E}} = 0.12$ zunimmt, werden auch die 7. und die 11. sichtbar, und die Linien Λ_a und Λ_b sind noch anwesend, sitzen allerdings auf einem breiten Untergrund. Dieses Phänomen basiert auf drei verschiedenen Effekten: (i) im allgemeinen nimmt die Breite der Linien Λ_a und Λ_b bei höheren Feldern zu, (ii) andere Kanäle, d.h. andere Resonanzlinien zwischen den zwei Ästen, können geöffnet werden, wenn das Feld stark genug wird, und (iii) durch die vom elektrischen Feld beseitigte Entartung werden mehr Resonanzlinien möglich. Diese Faktoren erzeugen eine breite Struktur im Spektrum der Harmonischen, deren Lage abhängig von A ist. Außerdem sind in der Abbildung 3.5b um die erwarteten Harmonischen andere Satellitenlinien zu sehen.

In Abbildung 3.5c, $\hat{\mathcal{E}} = 0.21$, sind viele Harmonischenpaare sichtbar und die oben

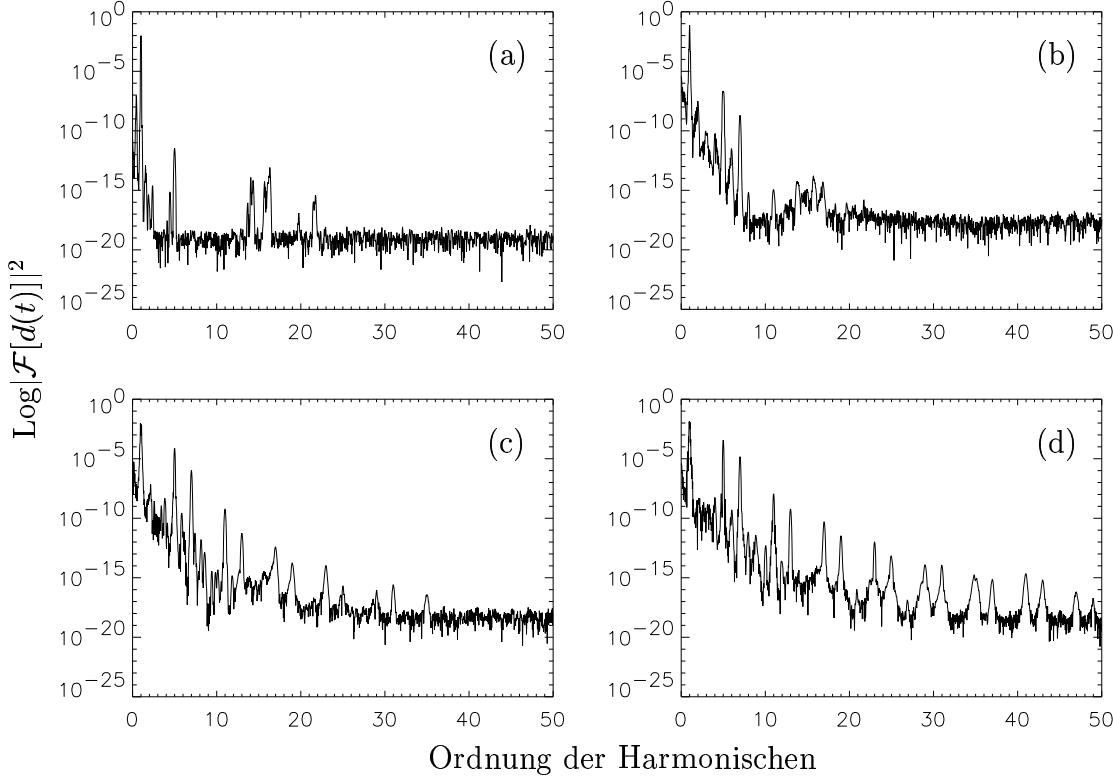


Abbildung 3.5: Entwicklung des Harmonischenspektrums mit zunehmender Feldstärke für $A = 1.6$: (a) $\hat{\mathcal{E}} = 0.02$, (b) $\hat{\mathcal{E}} = 0.12$, (c) $\hat{\mathcal{E}} = 0.21$, (d) $\hat{\mathcal{E}} = 0.27$. Wenn das Feld zunimmt, erscheinen um die Harmonischen niedriger Ordnung andere Satellitenlinien. Die höchste sichtbare Harmonische ist die 49ste.

angesprochene breite Struktur ist jetzt nur eine leichte Modulation des Harmonischenspektrums. Dies wird klarer in Abbildung 3.5d, wo Harmonische bis zur 49. anwesend sind und die 17. auf dieser breiten Struktur sitzt. Die Abhängigkeit der Harmonischenstärke vom elektrischen Feld wurde ebenfalls untersucht. Die Ergebnisse für Harmonische bis zur 31. sind in Abbildung 3.6 gezeigt. Für jedes Paar Harmonische gibt es eine Mindestschwelle für das Laserfeld, unter der die Harmonischen nicht sichtbar sind. Alle Stärken in der Abbildung 3.6 sind auf die Fundamentale normiert. Beachtenswert ist die Effizienz der 5. Harmonische, die 13% erreichen kann.

Wenn man die Simulationsserie aus Abbildung 3.5 für ein kleineres A wiederholt,

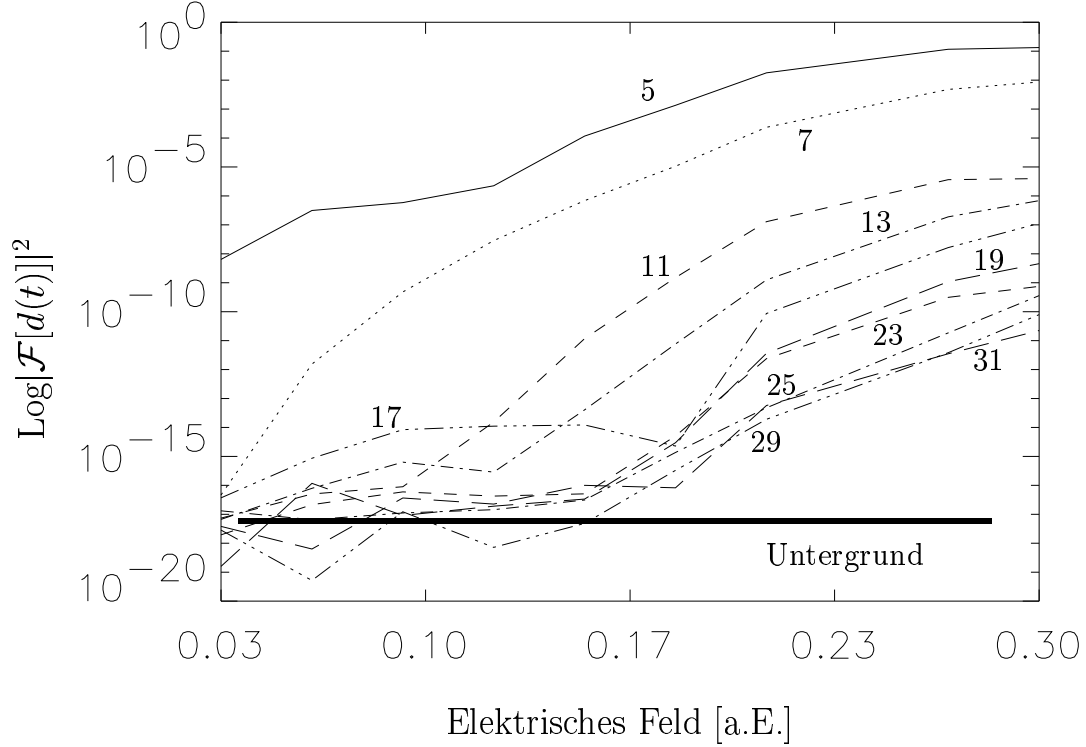


Abbildung 3.6: Stärke der Harmonischen in Abhängigkeit von der elektrischen Feldamplitude $\hat{\mathcal{E}}$ des Lasers. Die erste Harmonische (ω) kann eine Effizienz bis zu 13% erreichen. In der Niedrigfeldregion ist die Stärke der 13. und 17. Harmonischen wegen der Anwesenheit der breiten Untergrundstrukturen besonders hoch. Der Wert von A ist konstant, $A = 1.6$.

erhält man ähnliche Ergebnisse, solange der Abstand zwischen den Ästen aus Abbildung 3.2 genügend groß ist. Wenn der Abstand zirka zehn Photonen entspricht, spielen die zwei Linien Λ_a und Λ_b eine nicht so wichtige Rolle, weil sie in einer so niedrigen Frequenzregion liegen, daß sie von dem Hintergrund des Harmonischenspektrums verdeckt sind, der in diesem Bereich hoch ist. Während sich die Stärke der Harmonischen für zunehmende Laserfeldstärke erhöht, bleibt diejenige von Λ_a und Λ_b fast konstant. Die Ausdehnung des Harmonischenspektrums hängt von A ab. Bei fester Laserfrequenz werden um so weniger Harmonische erzeugt, je kleiner A ist.

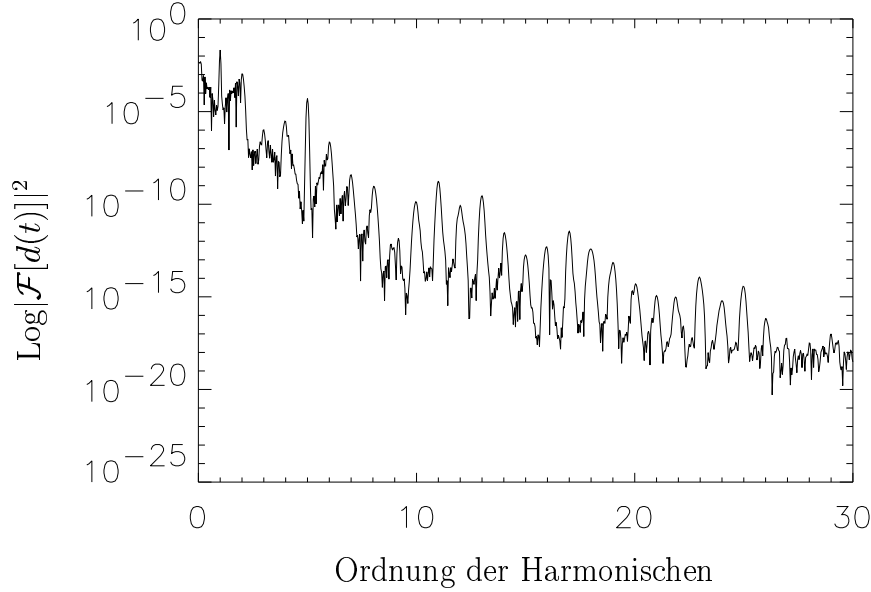


Abbildung 3.7: Spektrum für $A = 1.00$ und $\omega = 0.0942$. Der Wert von Ω kommt der Laserfrequenz ω nahe, und das Spektrum zeigt eine vielschichtige Struktur mit vielen starken Satellitenlinien.

Wie bereits erwähnt ist Ω der Abstand zwischen den Zuständen **0** und **1**. Für große A (oder hohe Frequenz) hat man $\omega > \Omega$, aber für zunehmendes A kommt Ω der Laserfrequenz nahe bzw. überholt sie. Das Verhältnis zwischen ω und Ω beeinflusst die Harmonischenausstrahlung. Man beobachtet, daß für $\omega \approx \Omega$ ein kompliziertes Spektrum erzeugt wird. Zusammen mit den erwarteten Harmonischen sind viele andere Linien mit ähnlicher Stärke anwesend. Ein Beispiel ist in Abbildung 3.7 gezeigt. Ähnliches wurde in einem eindimensionalen Modell [32] auch beobachtet. Die Form der Satellitenstrukturen um die erwarteten Harmonischen sind in beiden Fällen ähnlich.

Es scheint, daß das System in diesem Resonanzfall nicht in einem einzelnen nichtentarteten Floquet-Zustand ist. Extralinien, Satellitenstrukturen und andere Details sind in der Tat sehr sensibel bzgl. Pulsform und -dauer.

Um ein Modell zu untersuchen, das ähnlich zum echten Benzol ist, wurde $A = 0.375$ gewählt. Wenn die gleichen Pulsparameter beibehalten werden und A abnimmt,

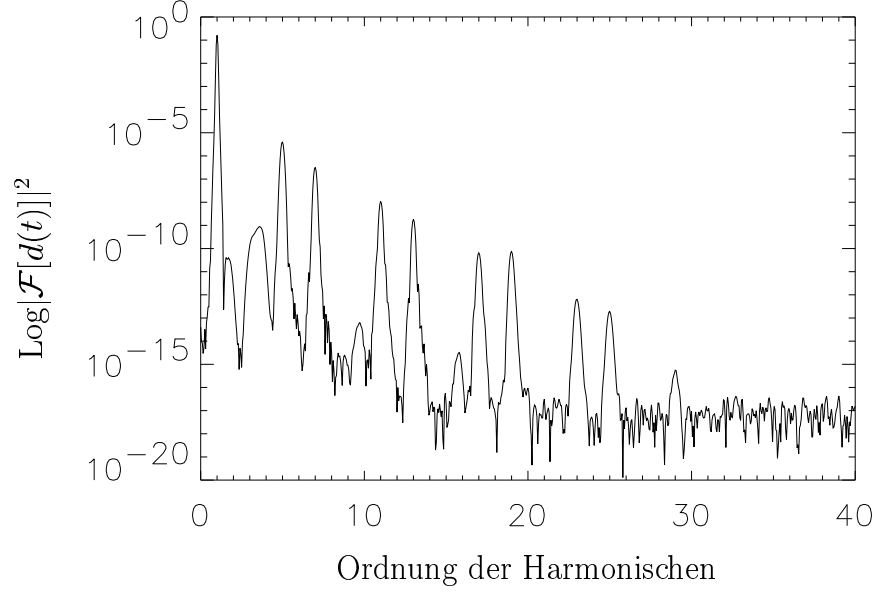


Abbildung 3.8: Dipolspektrum für $A = 0.375$ und $\omega = 0.0314$. Auch in diesem Fall, wo die Ionisierungsenergie der des Benzolmoleküls entspricht, zeigt das Spektrum die gleiche Struktur wie in dem hochgebundenen und hochfrequenten Fall. Die Linie bei 3ω ist ein Zerfall von Zustand **1** nach Zustand **0**.

wächst die Ionisationsrate. Daher sind unter diesen Bedingungen das Niveauschema und der Harmonischenerzeugungsprozeß im Vergleich zu den schon diskutierten sehr unterschiedlich: die Ionisierungsenergie ist von 2.44 auf 0.34 reduziert. Wie oben erwähnt existieren nur vier Zustände und die Lücke zwischen den beiden Ästen ist nicht da. Mit diesen Bedingungen führt ein Puls mit $\omega = 0.0942$ zu keinen Harmonischen. Die Frequenz ist im Vergleich zur Ionisierungsenergie hoch, und nur wenige Photonen sind nötig, um das Kontinuum zu erreichen. Abgesehen von extrem schwachen Feldern überwiegen sofort Übergänge ins Kontinuum.

Daher wurde eine Simulationsserie für das Benzolmodell mit einer niedrigen Frequenz $\omega = 0.0314$ gemacht. Mit dieser Frequenz sind elf Photonen nötig, um das Kontinuum zu erreichen, d.h. das Molekül kann nur mit einem Multiphotonenprozeß hoher Ordnung ionisiert werden. Ein Spektrum mit dieser niedrigen Frequenz und $\hat{\mathcal{E}} = 0.044$ ist in Abbildung 3.8 gezeigt. Wie in dem starkgebundenen und

hochfrequenten Fall zeigt das Dipolspektrum die von den Auswahlregeln erlaubten Harmonischen. Die Effizienz der Harmonischen in Abbildung 3.8 ist nicht so hoch wie die der Harmonischen in Abbildung 3.5. Eine neue Linie bei 3ω ist in dem Spektrum anwesend. Diese Linie ist eine Resonanz zwischen den Zuständen **0** und **1** (für $A = 0.375$, $\Omega = 0.0914 \approx 3\omega$). Die Ergebnisse der zweidimensionalen Simulationen sind im Vergleich zu denen der eindimensionalen Rechnungen in [32] verschieden. Für letztere wurden keine Harmonische für $\omega < \Omega$ beobachtet. Dies könnte daran liegen, daß im eindimensionalen Fall das Niveauschema verschieden ist und es kein Kontinuum gibt.

3.9 Ergebnisse im resonanten Fall

Wenn man mit \tilde{R} die feldfreie Energie der des Zustandes entsprechenden R-Darstellung der \mathcal{D}_6 Gruppe bezeichnet, erhält man als Energien der vier Zustände für $A = 1.0$, $\tilde{A}_1 = -1.292$, $\tilde{E}_1 = -1.226$, $\tilde{E}_2 = -1.098$ und $\tilde{B}_1 = -1.027$. Die Energieabstände zwischen den angeregten Zuständen und dem Grundzustand sind $\Omega_1 = 0.0658$, $\Omega_2 = 0.1937$ und $\Omega_3 = 0.2648$. Um eine einfache Bezugnahme zu ermöglichen, führen wir für den Übergang zwischen den Zuständen R_i und R_j und der entsprechenden Linie im Harmonischenspektrum die Bezeichnung \mathbf{L}_{\pm}^{ij} ein. \mathbf{L} ist der Wert von ℓ , der zur Übergangssymmetrie gehört. Der untere Index unterscheidet zwischen plus und minus in Gleichung (3.29). Die oberen Indizes geben den Anfangszustand bzw. Endzustand an. Die Reihenfolge der Zustände in dem oberen Index bestimmt das Vorzeichen der Linienverschiebung, die von dem Abstand zwischen den Zuständen abhängt. Die Mehrheit der Nichteinzelzustandsübergänge, die hier diskutiert werden, verbinden einen hohen Zustand mit dem Grundzustand. Übergänge zwischen hohen Zuständen sind möglich, aber unwahrscheinlich. Die Lage einer Linie, die von einem Übergang zwischen einem angeregten Zustand und dem Grundzustand erzeugt wird, ist $\mathbf{L}_{\pm}^{0i} = kN + i - \Delta_i \pm 1$, und für den entgegengesetzten Prozeß ist sie $\mathbf{L}_{\pm}^{0i} = kN - i + \Delta_i \pm 1$, wobei Δ_i der Abstand zwischen dem Grundzustand und dem Zustand R_i ist.

Wegen des dynamischen Stark-Effektes verschieben sich die Zustände; daher ist Δ_i

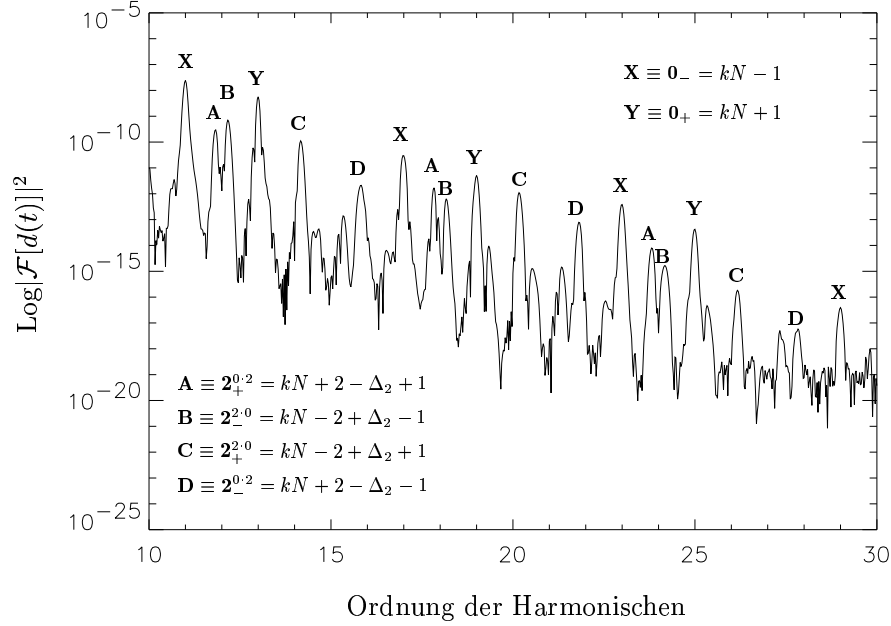


Abbildung 3.9: Dipolspektrum für das Benzolmodell. Die Laserfrequenz ist $\omega = 0.0942$. Zusammen mit den Linien, die aus der Einzelzustandsberechnung erwartet werden (**X** und **Y**), sind andere Linien anwesend, die von der Rekombination mit verschiedenen Zuständen erzeugt werden. Der zweite angeregte Zustand spielt eine wichtige Rolle.

durch $\Delta_i = \Omega_i + \delta_i$ gegeben. Ω_i ist der Abstand zwischen zwei feldfreien Zuständen, und δ_i ist die Verschiebung wegen der Anwesenheit des Laserfeldes. Da man die Auswahlregeln und die Werte der feldfreien Energieabstände weiß, kann man im Fall von Nichteinzelzustandsübergängen die Struktur des Harmonischenspektrums vorhersagen. Die einzigen Ungewißheiten sind die Werte der Verschiebungen δ_i , aber diese Verschiebungen können aus Simulationen mit verschiedenen Laserintensitäten ermittelt werden. Wenn das Feld schwach ist, ist δ_i sehr klein (für vernachlässigbare δ_i erhält man $\Delta_i \rightarrow \Omega_i$) und die Linien liegen in der Nähe der Positionen, die man von dem ungestörten Niveauschema erwartet. Bei zunehmendem Feld kann die Verschiebung der Zustände verfolgt werden. Obwohl die Verschiebungen ziemlich groß werden können, bleibt die Interpretation des Spektrums immer eindeutig.

Ein Beispiel eines Spektrums mit Linien, die von Prozessen zwischen verschiedenen

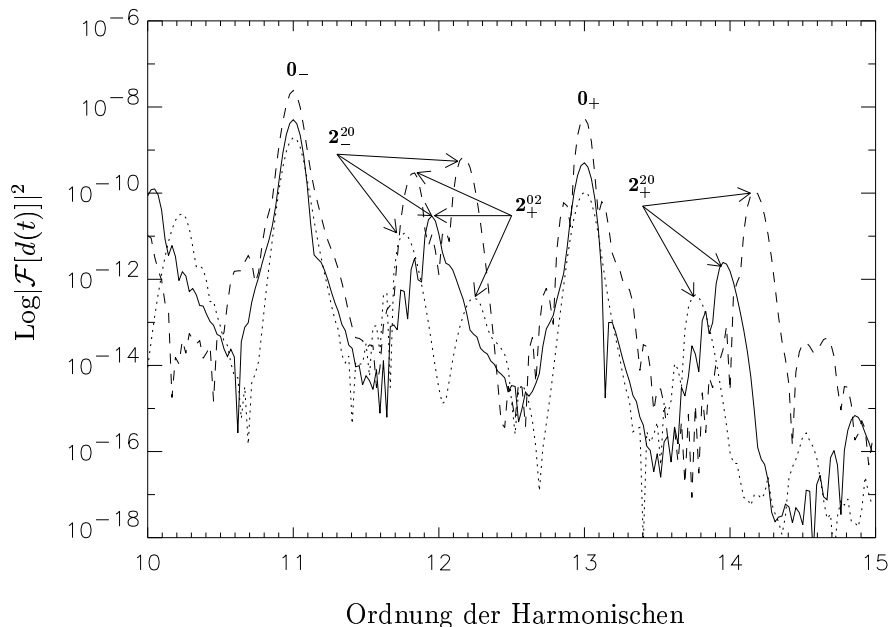


Abbildung 3.10: Dipolspektren für verschiedenen Feldintensitäten: $\hat{\mathcal{E}} = 0.10$ (durchgezogene Linie), $\hat{\mathcal{E}} = 0.08$ (gepunktete Linie), and $\hat{\mathcal{E}} = 0.14$ (gestrichelte Linie). Die Verschiebung wegen des Laserfeldes kann sehr stark sein. Linien bewegen nach rechts oder nach links, je nach den Anfangszuständen.

Zuständen erzeugt werden, wird in der Abbildung 3.9 gezeigt. In diesem Beispiel ist die Wechselwirkung zwischen einem Puls von 40 Zyklen und $\omega = 0.0942$ mit einem Elektron im molekularen Modellpotential simuliert worden. Die Amplitude des Laserfeldes $\hat{\mathcal{E}}$ war 0.14. Für jede Linie ist es möglich, den erzeugenden Prozeß abzuleiten. Dasselbe Symbol entspricht demselben Prozeß, aber mit einem verschiedenen Multiplikator k , d.h. eine verschiedene Zahl Photonen.

Im Fall von Benzol wird ein solcher Prozeß alle $N = 6$ Frequenzeinheiten wiederholt. Die Zustände, die zusammen mit dem Grundzustand eine Rolle spielen, sind der erste und der zweite angeregte, d.h. E_1 und E_2 . Die Übergänge zwischen dem Grundzustand und dem Zustand E_1 erzeugen Linien der Art **1**, die zwischen dem Grundzustand und dem Zustand E_2 Linien der Art **2**. Mit den Parametern, die zu dem in Abbildung 3.9 gezeigten Spektrum führen, findet man, daß insbesondere der Zustand E_2 eine wichtige Rolle spielt. Dies liegt an der Laserfrequenz, die fast

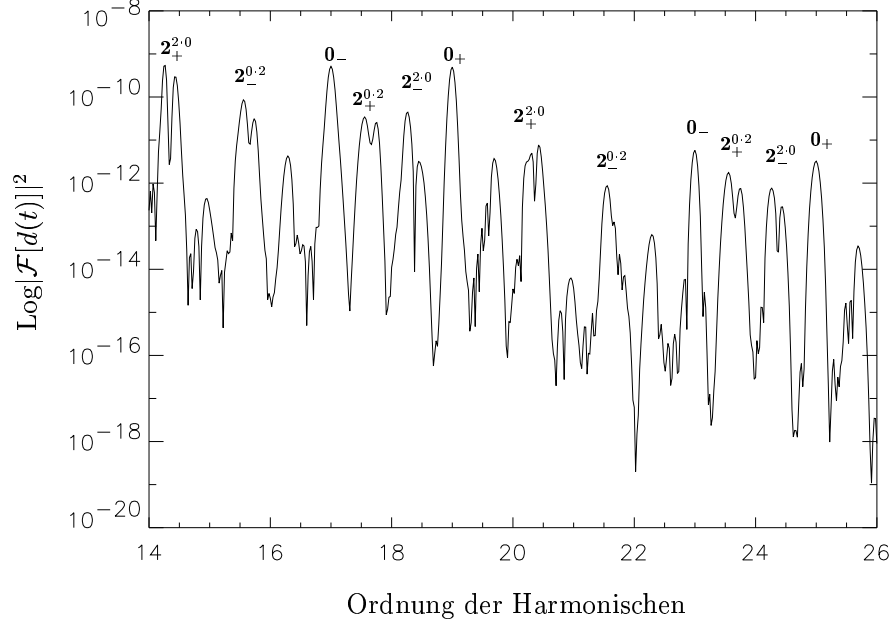


Abbildung 3.11: Dipolspektrum, erhalten mit einer niedrigeren Lasefrequenz $\omega = 0.0785$. Die Aufspaltung der Linien wegen der Aufhebung der Entartungen ist deutlich sichtbar.

resonant mit dem Übergang in diesen Zustand ist. In der Tat kann mit anderen Frequenzen die Intensität der Linien **1** und **2** sehr verschieden sein. Wegen der Aufhebung der Entartung zwischen den Zuständen E_1 und E_2 erwartet man mehr Linien als die in der Abbildung 3.9 anwesenden.

Um dieses Problem zu lösen, betrachten wir den Zustand E_2 , der in diesem Fall die wichtigste Rolle spielt. Theoretisch erzeugt jeder Übergang vom Grundzustand zu E_2 zwei Linien $\mathbf{2}_{\pm}^{02} = kN - 2 + \Delta_2 \pm 1$ und zwei Linien $\mathbf{2}_{\pm}^{20} = kN + 2 - \Delta_2 \pm 1$. Daher sind zunächst acht Linien zu erwarten. Wenn man allerdings zwei entarteten Zustände E_2^a und E_2^b betrachtet, hat man die Verschiebungen $\Delta_2^a = \Omega_2^a + \delta_2^a$ und $\Delta_2^b = \Omega_2^b + \delta_2^b$. Da $\Omega_2^a = \Omega_2^b$, folgt, daß die acht Linien in vier zusammenfallen, wenn die Differenz zwischen den zwei Verschiebungen δ_i klein ist. Das Linienpaar, welches in eine Linie zusammenfällt, ist schwer aufzulösen, da nicht der Wert von δ_i sondern die Differenz $\delta_a - \delta_b$ maßgebend ist. Da ohne Feld die Zustände E_2^a und E_2^b entartet sind, ist $\delta_a - \delta_b$ die vom Feld erzeugte Aufspaltung. In unserer Schreibweise

erhält man z.B. $\mathbf{2}_{-}^{02(b)} - \mathbf{2}_{-}^{02(a)} = \delta_2^a - \delta_2^b$. Dieselbe Herleitung ist auch für die anderen drei Paare möglich. Dies erklärt, warum in der Abbildung nur vier Linien anwesend sind. Um eine deutlichere Aufspaltung zu erhalten, haben wir die Abhängigkeit der δ_i von den verschiedenen Parametern untersucht. Mit niedrigen Laserfrequenzen wird bei konstanten $\hat{\mathcal{E}}$ die Aufspaltung größer. Außerdem wurde beobachtet, daß der Wert von δ_i im Vergleich zu Ω_i groß werden kann. In der Abbildung 3.10 ist die Verschiebung für verschiedenen Laserintensitäten gezeigt. Ein Spektrum, das mit kleinerer Frequenz $\omega = 0.0785$ erhalten wurde, wird in Abbildung 3.11 gezeigt. Die Linien, die bei höheren Frequenzen kaum getrennt auflösen sind, sind dort deutlich zu erkennen.

Zusammenfassung und Ausblick

In dieser Arbeit sind Multiphotonenprozesse in der Wechselwirkung zwischen Atomen oder Molekülen mit intensiven Laserfeldern untersucht worden. Beispiele von Resultaten aus *ab initio* Simulationen zur sog. „Above-Threshold“-Ionisation, zur Erzeugung von Harmonischen und zur adiabatischen Stabilisierung wurden präsentiert und die verwendeten numerischen Techniken dargelegt. Insbesondere wurde durch numerische Simulationen und analytische Berechnungen die Harmonischenerzeugung in Systemen, die eine dynamische Symmetrie zeigen, studiert. Beispiele solcher Systeme sind Ringmoleküle Moleküle und Atome, die mit einem bzw. zwei zirkular polarisierten Laserfeldern wechselwirken. Das Harmonischenspektrum kann sehr komplizierte Strukturen annehmen, die mit den in der Literatur bisher bekannten Auswahlregeln nicht zu erklären sind. Nur in den Fällen, wo sich das System in einem einzigen Floquet-Zustand befindet, gelten die einfachen Auswahlregeln, die z.B. auch direkt aus der Drehimpulserhaltung folgen. Die komplexe Struktur in den Harmonischenspektren wurde im Rahmen dieser Arbeit durch die mit gruppentheoretischen hergeleiteten neuen, verallgemeinerten Auswahlregeln vollständig erklärt. Numerische Simulationen dienten sowohl dazu, qualitative Gesichtspunkte, wie z.B. die Effizienz der Harmonischenerzeugung, zu untersuchen, als auch dazu, die Gültigkeit der in den analytischen Herleitungen gemachte Annahmen zu demonstrieren.

Das Gebiet der Harmonischenerzeugung in solchen Systemen ist von hoher Relevanz für Anwendungen. Wenn eine Konfiguration gefunden werden kann, welche die Ausbeute der hohen Harmonischen verbessert, können diese Systeme als effiziente Quellen kurzwelliger Strahlung benutzt werden.

Anhang A

Der Zeitentwicklungsoperator

Wenn das Zeitintervall Δt genügend klein ist, ist

$$U(\Delta t) = \exp(-i\Delta t H(t + \Delta t/2)) \quad (\text{A.1})$$

eine gute Näherung des exakten Zeitentwicklungsoperators. Für den Hamilton-Operator (2.12) wird eine Näherung bis zur zweiten Ordnung in Δt gegeben durch

$$\begin{aligned} U_{\text{split}}(\Delta t) = & \prod_{\ell=L-2}^0 \left(\exp(-i\tau H_{\text{ang}}^\ell) \exp(-i\tau H_{\text{mix}}^\ell) \right) \\ & \times \exp(-i\Delta t H_{\text{at}}) \prod_{\ell=0}^{L-2} \left(\exp(-i\tau H_{\text{mix}}^\ell) \exp(-i\tau H_{\text{ang}}^\ell) \right), \end{aligned} \quad (\text{A.2})$$

wobei $\tau = \Delta t/2$ ist. Die Crank-Nicholson-Näherung zu $\exp(-i\Delta t H)$ ist

$$\exp(-i\Delta t H) = (1 + i\Delta t H/2)^{-1} (1 - i\Delta t H/2) + O(\Delta t)^3, \quad (\text{A.3})$$

und (A.2) wird zu

$$\begin{aligned}
U_{\text{CN}}(\tau) = & \prod_{\ell=L-2}^0 \left(\underbrace{\left(1 + i\frac{\tau}{2}H_{\text{ang}}^\ell\right)^{-1} \left(1 - i\frac{\tau}{2}H_{\text{ang}}^\ell\right)}_{R^\ell} \underbrace{\left(1 + i\frac{\tau}{2}H_{\text{mix}}^\ell\right)^{-1} \left(1 - i\frac{\tau}{2}H_{\text{mix}}^\ell\right)}_{X_+^\ell} \underbrace{\left(1 - i\frac{\tau}{2}H_{\text{mix}}^\ell\right)}_{X_-^\ell} \right) \\
& \times \underbrace{\left(1 + i\tau H_{\text{at}}\right)^{-1}}_{Q_+} \underbrace{\left(1 - i\tau H_{\text{at}}\right)}_{Q_-} \\
& \times \prod_{\ell=0}^{L-2} \left(\underbrace{\left(1 + i\frac{\tau}{2}H_{\text{mix}}^\ell\right)^{-1} \left(1 - i\frac{\tau}{2}H_{\text{mix}}^\ell\right)}_{X_+^\ell} \underbrace{\left(1 - i\frac{\tau}{2}H_{\text{mix}}^\ell\right)}_{X_-^\ell} \underbrace{\left(1 + i\frac{\tau}{2}H_{\text{ang}}^\ell\right)^{-1} \left(1 - i\frac{\tau}{2}H_{\text{ang}}^\ell\right)}_{R^\ell} \right)
\end{aligned} \tag{A.4}$$

$$= \prod_{\ell=L-2}^0 \left(R^\ell \left[X_+^\ell \right]^{-1} X_-^\ell \right) Q_+^{-1} Q_- \prod_{\ell=0}^{L-2} \left(\left[X_+^\ell \right]^{-1} X_-^\ell R^\ell \right), \tag{A.5}$$

wobei evtl. Ortsabhängigkeiten (Index n) unterdrückt wurden.

Mit (2.15) folgt,

$$R_n^\ell = \frac{1}{1 + f_{n\ell}^2} \begin{pmatrix} 1 - f_{n\ell}^2 & -2f_{n\ell} \\ 2f_{n\ell} & 1 - f_{n\ell}^2 \end{pmatrix}, \quad f_{n\ell} = -A(t) \frac{\tau}{2} \frac{t_\ell}{r_n}, \tag{A.6}$$

und

$$\begin{aligned}
\left[X_+^\ell \right]^{-1} X_-^\ell &= \left(1 + \frac{\tau}{2} A(t) L_\ell \otimes \tilde{M}_1^{-1} \tilde{\Delta}_1 \right)^{-1} \left(1 - \frac{\tau}{2} A(t) L_\ell \otimes \tilde{M}_1^{-1} \tilde{\Delta}_1 \right) \\
&= \underbrace{\left(1_\ell \otimes \tilde{M}_1 + \frac{\tau}{2} A(t) L_\ell \otimes \tilde{\Delta}_1 \right)^{-1}}_{Y_+^\ell} \underbrace{\left(1_\ell \otimes \tilde{M}_1 - \frac{\tau}{2} A(t) L_\ell \otimes \tilde{\Delta}_1 \right)}_{Y_-^\ell}.
\end{aligned}$$

Die Matrizen Y_{\pm}^{ℓ} sind nicht tridiagonal, sondern nur blocktridiagonal

$$Y_{\pm}^{\ell} = \left(\begin{array}{cc|cc|cc|cc|cc} \frac{4+x}{6} & \pm yg_{\ell} & \frac{1}{6} & \pm g_{\ell} & & & & & & \\ \pm yg_{\ell} & \frac{4+x}{6} & \pm g_{\ell} & \frac{1}{6} & & & & & & \\ \hline \frac{1}{6} & \mp g_{\ell} & \frac{2}{3} & & \frac{1}{6} & \pm g_{\ell} & & & & \\ \mp g_{\ell} & \frac{1}{6} & & \frac{2}{3} & \pm g_{\ell} & \frac{1}{6} & & & & \\ \hline & & \frac{1}{6} & \mp g_{\ell} & \frac{2}{3} & & \frac{1}{6} & \pm g_{\ell} & & \\ & & \mp g_{\ell} & \frac{1}{6} & & \frac{2}{3} & \pm g_{\ell} & \frac{1}{6} & & \\ \hline & & & & \cdot & & \cdot & & \cdot & \\ & & & & & \cdot & & \cdot & & \\ \hline & & & & & & \frac{1}{6} & \mp g_{\ell} & \frac{4+x}{6} & \mp yg_{\ell} \\ & & & & & & \mp g_{\ell} & \frac{1}{6} & \mp yg_{\ell} & \frac{4+x}{6} \end{array} \right) \quad (\text{A.7})$$

mit $g_{\ell} = \tau A(t)c_{\ell}/4h$. Die Ordnung der Matrix ist $2N$, und sie wirkt auf Vektoren

$$\mathbf{\Gamma}_{\ell} = \left(\boxed{\Phi_{\ell}(r_1, t), \Phi_{\ell+1}(r_1, t)}, \boxed{\Phi_{\ell}(r_2, t), \Phi_{\ell+1}(r_2, t)}, \dots, \boxed{\Phi_{\ell}(r_N, t), \Phi_{\ell+1}(r_N, t)} \right)^{\top}.$$

Mit

$$\mathbf{B} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ -1 & 1 \end{pmatrix}$$

$$\mathbf{B} \mathbf{L}_{\ell} \mathbf{B}^{\top} = \begin{pmatrix} c_{\ell} & 0 \\ 0 & -c_{\ell} \end{pmatrix}$$

folgt allerdings

$$\begin{aligned}
\mathbf{Y}_{\pm}^{\ell} &= (\mathbf{B} \otimes \mathbf{1}_r) \mathbf{Y}_{\pm}^{\ell} (\mathbf{B} \otimes \mathbf{1}_r)^{\top} \\
&= \begin{pmatrix}
\frac{4+x}{6} \pm yg_{\ell} & 0 & \frac{1}{6} \pm g_{\ell} & 0 \\
0 & \frac{4+x}{6} \mp yg_{\ell} & 0 & \frac{1}{6} \mp g_{\ell} \\
\frac{1}{6} \mp g_{\ell} & 0 & \frac{2}{3} & 0 \\
0 & \frac{1}{6} \pm g_{\ell} & 0 & \frac{2}{3}
\end{pmatrix} \\
&= \begin{pmatrix}
\frac{4+x}{6} \pm yg_{\ell} & 0 & \frac{1}{6} \pm g_{\ell} & 0 \\
0 & \frac{4+x}{6} \mp yg_{\ell} & 0 & \frac{1}{6} \mp g_{\ell} \\
\frac{1}{6} \mp g_{\ell} & 0 & \frac{2}{3} & 0 \\
0 & \frac{1}{6} \pm g_{\ell} & 0 & \frac{2}{3}
\end{pmatrix}
\end{aligned}$$

$$= \left(\begin{array}{cc|cc|cc|cc|cc} \frac{4+x}{6} \pm yg_\ell & 0 & \frac{1}{6} \pm g_\ell & 0 & & & & & & \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & & & & \\ \hline \frac{1}{6} \mp g_\ell & 0 & \frac{2}{3} & 0 & \frac{1}{6} \pm g_\ell & 0 & & & & \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & & & & \\ \hline & & \frac{1}{6} \mp g_\ell & 0 & \frac{2}{3} & 0 & \frac{1}{6} \pm g_\ell & 0 & & \\ & & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & & \\ \hline & & & & \cdot & & \cdot & & \cdot & \\ & & & & & \cdot & & \cdot & & \\ \hline & & & & & & \frac{1}{6} \mp g_\ell & 0 & \frac{4+x}{6} \mp yg_\ell & 0 \\ & & & & & & 0 & 0 & 0 & 0 \end{array} \right)$$

$$+ \left(\begin{array}{cc|cc|cc|cc|cc} 0 & 0 & 0 & 0 & & & & & & \\ 0 & \frac{4+x}{6} \mp yg_\ell & 0 & \frac{1}{6} \mp g_\ell & & & & & & \\ \hline 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & & & & \\ 0 & \frac{1}{6} \pm g_\ell & 0 & \frac{2}{3} & 0 & \frac{1}{6} \mp g_\ell & & & & \\ \hline & & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & & \\ & & 0 & \frac{1}{6} \pm g_\ell & 0 & \frac{2}{3} & 0 & \frac{1}{6} \mp g_\ell & & \\ \hline & & & & \cdot & & \cdot & & \cdot & \\ & & & & & \cdot & & \cdot & & \\ \hline & & & & & & 0 & 0 & 0 & 0 \\ & & & & & & 0 & \frac{1}{6} \pm g_\ell & 0 & \frac{4+x}{6} \pm yg_\ell \end{array} \right)$$

$$= \bar{Y}_{1\pm}^\ell + \bar{Y}_{2\pm}^\ell$$

und der Vektor Γ_ℓ transformiert sich gemäß

$$\begin{aligned}
\bar{\Gamma}_\ell &= (\mathbb{B} \otimes \mathbf{1}_r) \Gamma_\ell = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} \Phi_\ell(r_1, t) + \Phi_{\ell+1}(r_1, t) \\ -\Phi_\ell(r_1, t) + \Phi_{\ell+1}(r_1, t) \\ \hline \Phi_\ell(r_2, t) + \Phi_{\ell+1}(r_2, t) \\ -\Phi_\ell(r_2, t) + \Phi_{\ell+1}(r_2, t) \\ \hline \Phi_\ell(r_3, t) + \Phi_{\ell+1}(r_3, t) \\ -\Phi_\ell(r_3, t) + \Phi_{\ell+1}(r_3, t) \\ \hline \cdot \\ \cdot \\ \hline \Phi_\ell(r_N, t) + \Phi_{\ell+1}(r_N, t) \\ -\Phi_\ell(r_N, t) + \Phi_{\ell+1}(r_N, t) \end{pmatrix} \\
&= \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} \Phi_\ell(r_1, t) + \Phi_{\ell+1}(r_1, t) \\ 0 \\ \hline \Phi_\ell(r_2, t) + \Phi_{\ell+1}(r_2, t) \\ 0 \\ \hline \Phi_\ell(r_3, t) + \Phi_{\ell+1}(r_3, t) \\ 0 \\ \hline \cdot \\ \cdot \\ \hline \Phi_\ell(r_N, t) + \Phi_{\ell+1}(r_N, t) \\ 0 \end{pmatrix} + \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 0 \\ -\Phi_\ell(r_1, t) + \Phi_{\ell+1}(r_1, t) \\ \hline 0 \\ -\Phi_\ell(r_2, t) + \Phi_{\ell+1}(r_2, t) \\ \hline 0 \\ -\Phi_\ell(r_3, t) + \Phi_{\ell+1}(r_3, t) \\ \hline \cdot \\ \cdot \\ \hline 0 \\ -\Phi_\ell(r_N, t) + \Phi_{\ell+1}(r_N, t) \end{pmatrix} \\
&= \bar{\Gamma}_{1\ell} + \bar{\Gamma}_{2\ell}.
\end{aligned}$$

Deshalb gilt

$$\bar{\mathbf{Y}}_\pm^\ell \bar{\Gamma}_\ell = (\bar{\mathbf{Y}}_{1\pm}^\ell + \bar{\mathbf{Y}}_{2\pm}^\ell)(\bar{\Gamma}_{1\ell} + \bar{\Gamma}_{2\ell}) = \bar{\mathbf{Y}}_{1\pm}^\ell \bar{\Gamma}_{1\ell} + \bar{\mathbf{Y}}_{2\pm}^\ell \bar{\Gamma}_{2\ell},$$

d.h., die ursprünglich blocktridiagonale Matrix $\bar{\mathbf{Y}}_\pm^\ell$ wurde in zwei tridiagonale Matrizen, welche in disjunkten Unterräumen wirken, transformiert.

Letztendlich schreiben wir

$$\begin{aligned}
Q_+^{-1}Q_- &= \left(\mathbf{1} + i\tau \mathbf{1}_\ell \otimes (\tilde{M}_2^{-1} \tilde{\Delta}_2 + V_{\text{eff}}^\ell) \right)^{-1} \left(\mathbf{1} - i\tau \mathbf{1}_\ell \otimes (\tilde{M}_2^{-1} \tilde{\Delta}_2 + V_{\text{eff}}^\ell) \right) \quad (\text{A.8}) \\
&= \underbrace{\left(\mathbf{1}_\ell \otimes \tilde{M}_2 + i\tau \mathbf{1}_\ell \otimes (\tilde{\Delta}_2 + \tilde{M}_2 V_{\text{eff}}^\ell) \right)^{-1}}_{W_+} \underbrace{\left(\mathbf{1}_\ell \otimes \tilde{M}_2 - i\tau \mathbf{1}_\ell \otimes (\tilde{\Delta}_2 + \tilde{M}_2 V_{\text{eff}}^\ell) \right)}_{W_-},
\end{aligned}$$

sodaß der numerisch implementierte Propagator

$$\begin{aligned}
U_{\text{CN}}(\tau) &= \prod_{\ell=L-2}^0 \left(R^\ell (B \otimes \mathbf{1}_r)^\top [\bar{Y}_+]^\ell \right)^{-1} \bar{Y}_-^\ell (B \otimes \mathbf{1}_r) \quad (\text{A.9}) \\
&\quad \times W_+^{-1} W_- \prod_{\ell=0}^{L-2} \left((B \otimes \mathbf{1}_r)^\top [\bar{Y}_+]^\ell \right)^{-1} \bar{Y}_-^\ell (B \otimes \mathbf{1}_r) R^\ell
\end{aligned}$$

lautet. Er setzt sich nur aus Tridiagonalmatrizen und einfachen Transformationen in $(\ell, \ell + 1)$ -Unterräumen zusammen.

Anhang B

Berechnung des Elektronen-Spektrums

Für ein System, das durch den Hamilton-Operator H_0 und dessen Zustand durch die Wellenfunktion Ψ_f gegeben ist, kann man die Wahrscheinlichkeit, ein Elektron in einem Energieintervall der Breite 2γ um E_k anzutreffen, durch

$$P_\gamma(E_k) \sim \langle \Psi_f | \hat{W} | \Psi_f \rangle \quad (\text{B.1})$$

berechnen [33], wo

$$\hat{W}(E_k, n, \gamma) \equiv \frac{\gamma^{2^n}}{\left[\left(\hat{H}_0 - E_k \right)^{2^n} + \gamma^{2^n} \right]} \quad (\text{B.2})$$

der Operator des spektralen „Fensters“ ist. Mit

$$\left[\left(\hat{H}_0 - E_k \right)^{2^{n-1}} + i\gamma^{2^{n-1}} \right] |\chi_k\rangle = |\psi_f\rangle \quad (\text{B.3})$$

ist

$$P_\gamma(E_k) = \gamma^{2^n} \langle \chi_k | \chi_k \rangle. \quad (\text{B.4})$$

Für $n = 2$ wird (B.3) zu

$$\left(\hat{H}_0 - E_k + \sqrt{i}\gamma \right) \left(\hat{H}_0 - E_k - \sqrt{i}\gamma \right) |\chi_k\rangle = |\psi_f\rangle. \quad (\text{B.5})$$

$|\chi_k\rangle$ wird numerisch aus (B.5) ermittelt, woraus mittels (B.4) das Spektrum $P_\gamma(E_k)$ folgt.

Die Lösung der diskretisierten Version von (B.5) erfordert lediglich die Inversion von Tridiagonalmatrizen.

Literaturverzeichnis

- [1] M. Protopapas, C.H. Keitel, and P.L. Knight, Rep. Prog. Phys. **60**, 389 (1997).
- [2] D.M. Wolkow, Z. Phys. **119**, 250 (1935).
- [3] L.V. Keldysh, Sov. Phys. JETP **20**, 1307 (1965).
- [4] M.Yu. Kuchiev, JETP Letters **45**, 404 (1987).
- [5] M.Yu. Kuchiev, J. Phys. B **28**, 5093 (1995).
- [6] P.B. Corkum, Phys. Rev. Lett. **71**, 1994 (1993).
- [7] J.L. Krause, K.J. Schafer, and K.C. Kulander, Phys. Rev. Lett. **68**, 3535 (1992).
- [8] W. Becker, S. Long, and J.K. McIver, Phys. Rev. A **50**, 1540 (1994).
- [9] H.B. van Linden van den Heuvell and H.G. Muller in *Multiphoton Processes*, (Cambridge University Press, Cambridge, 1988).
- [10] J.I. Gersten and M.H. Mittleman, Phys. Rev. A **10**, 74 (1974).
- [11] J.I. Gersten and M.H. Mittleman, Phys. Rev. A **11**, 1103 (1975).
- [12] F. Ceccherini and D. Bauer, GSI report no. GSI-99-04, High Energy Density in Matter, 1999.
- [13] M. Lewenstein, K. Rzazewski, and P. Salières in *Super-Intense Laser-Atom Physics*, (Plenum Press, New York, 1993).

- [14] M.P. de Boer, J.H. Hoogenraad, R.B. Vrijen, L.D. Noordam, and H.G. Muller, Phys. Rev. Lett. **71**, 3263 (1993).
- [15] D. Bauer and F. Ceccherini, Phys. Rev. A **60**, 2301 (1999).
- [16] N.J. Kylstra, R.A. Worthington, A. Patel, P.L. Knight, J.R. Vazquez de Aldana, and L. Roso, Phys. Rev. Lett **85**, 1835 (2000).
- [17] H.G. Muller, Laser Physics **9**, 138 (1999).
- [18] W.H. Press, S.A. Teukolsky, W.T. Vetterling and B.P. Flannery, *Numerical Recipes in C*, (Cambridge University Press, Cambridge, 1992).
- [19] K.J. Schafer and K.C. Kulander, Phys. Rev. Lett. **78**, 638 (1997).
- [20] S.G. Preston, A. Sanpera, M. Zepf, W. J. Blyth, C. G. Smith, J. S. Wark, M. H. Key, K. Burnett, M. Nakai, D. Neely, and A. A. Offenberger, Phys. Rev. A **53**, R31 (1996).
- [21] D.B. Milosevic, W. Becker and R. Kopold, Phys. Rev. A **61**, 063403 (2000).
- [22] V. Veniard, R. Taieb, and A. Maquet, Phys. Rev. A **60**, 3952 (1999).
- [23] L. Plaja and L. Roso-Franco, Phys. Rev. B **45**, 8334 (1992).
- [24] F.H.M. Faisal and J.Z. Kaminski, Phys. Rev. A **56**, 748 (1997).
- [25] O. Alon, V. Averbukh, N. Moiseyev, Phys. Rev. Lett. **80**, 3743 (1998).
- [26] H. Sambe, Phys. Rev. A **7**, 2203 (1973).
- [27] L.D. Landau, E.M. Lifshitz, *Quantum Mechanics, Non-relativistic Theory*, (Pergamon Press, Oxford, 1977).
- [28] Michael Tinkham, *Group Theory and Quantum Mechanics*, (McGraw-Hill Book Company, New York, 1964).
- [29] F. Ceccherini and D. Bauer, J. Phys. B **34**, 5017 (2001).

- [30] F. Ceccherini and D. Bauer, Phys. Rev. A **64**, 033423 (2001).
- [31] N. Levine, *Quantum Chemistry* (Prentice-Hall, Upper Saddle River, New Jersey, 2000).
- [32] D. Bauer and F. Ceccherini, Laser and Particle Beams **19**, 85 (2001).
- [33] K.J. Schafer and K.C. Kulander, Phys. Rev. A **42**, 5794 (1990).
- [34] F. Ceccherini and D. Bauer, Laser and Particle Beams **18**, 449 (2000).

Acknowledgments

I cannot terminate this thesis without thanking all the people to whom I am in debt for having sustained and encouraged me, making this work possible.

Among them, first of all, I wish to thank Prof. Peter Mulser who did not hesitate in offering me the possibility of joining his group TQE in Darmstadt. During all this period he permitted me to work in a friendly and very “gemütliche” atmosphere. He always showed huge understanding for all the needs, and also for that I am very grateful to him.

Finding the right words for thanking Dieter Bauer is for me not easy at all. I can certainly say that through the many discussions I had with him new ideas have been stimulated and new work has been planned. But my debt towards him goes far beyond physics. Thank to him I have known a country different from mine, allowing me to grow not only from the scientific point of view.

I have no doubts that the memory and the lessons I collected during this period will not depart from me for all my life.

A special thanking must go also to the Italian counterpart, Prof. Fulvio Cornolti and Andrea Macchi. Both have always done whatever was possible for allowing me to go on with the work during all my visits to Pisa. I am particularly grateful to them for the interest they have showed in my studies and for the opportunity they gave me of being member of the FUMOFIL Project, which turned out to be a very useful and pleasant experience.

The work presented has required a big calculation effort and the majority of these calculations have been performed at the PC² facility in Paderborn. I thank all the people there for the possibility of using their machines and for the helpful assistance.

Ringraziamenti

C'è soprattutto una persona che ha reso questo lavoro e questa esperienza possibile. Senza l'aiuto e la comprensione di Cristiana tutto ciò sarebbe stato certamente molto più difficile e probabilmente impossibile. Nonostante i davvero non pochi sacrifici personali che si sono resi necessari Cristiana è sempre stata certa della validità di questo mio (o meglio, nostro) impegno ed ha mostrato una pazienza praticamente unica.

Un sentito ringraziamento va ai miei genitori, i quali sin dal primo momento mi hanno costantemente incoraggiato e si sono tenuti informati sul mio lavoro. Benché le mie visite in Italia durante questi tre anni fossero relativamente frequenti ogni qual volta che tornavo ero sempre accolto da loro come “il figliol prodigo” che torna per la prima volta, trasformando così ogni mia permanenza in un periodo estremamente piacevole.

Un effettuso pensiero va anche a tutti i miei amici, in particolare a Danilo, il quale è stato quotidianamente in contatto con me, a Matteo e Francesca, Daniele e Susanna, Maria Rosaria, Andrea e Rita, ed Andrea Marchi.

Lebenslauf

Personalangaben

Name	Francesco Ceccherini
Geburtstag, -ort:	16. Juni 1973, Lucca
Familienstand:	Verheiratet mit Cristiana Matteucci
Eltern:	Gabriella Cerri, Silvano Ceccherini

Schulbildung

1979 - 1984	Scuola Elementare „Dorotee“, Porcari (Lucca)
1984 - 1987	Scuola Media „Cavanis“, Porcari (Lucca)
1987 - 1992	Liceo Scientifico ad indir. Matematico-Fisico „Antonio Vallisneri“, Lucca
Juli 1992	„Diploma di Maturità Scientifica“ (Wissenschaftliches Abitur)

Berufsausbildung

Okt. 1992 - Sept. 1998	Physikstudium an der „Università degli Studi di Pisa“, Pisa
Feb. 1997 - Sept. 1998	„Laurea“-Arbeit an dem „Istituto di Fisica Atomica e Molecolare“, Pisa, über <i>Studies of ionization processes in a magneto-optical trap</i> (experimentell)
29.09.1998	„Laurea“-Diskussion
seit 01.12.1998	wissenschaftlicher Mitarbeiter und Doktorand in der Arbeitsgruppe Theoretische Quantenelektronik, Institut für Angewandte Physik, TU Darmstadt

Darmstadt, im Januar 2002

Erklärung

Hiermit erkläre ich, daß ich die vorliegende Arbeit selbständig und nur unter Verwendung zulässiger Hilfsmittel verfaßt habe.

Zudem versichere ich, zuvor weder in Darmstadt noch andernorts eine Arbeit zum Zwecke einer Promotion vorgelegt zu haben.

Darmstadt, im Januar 2002